

TIN-DOPED INDIUM OXIDE PARTICULATE DISPERSION AND ITS PRODUCTION METHOD; GLASS LAMINATE INTERLAYER USING THE DISPERSION AND HAVING HEAT RAY SHIELDING PROPERTY; AND GLASS LAMINATE

Patent number: JP2005187226
Publication date: 2005-07-14
Inventor: HAGIWARA MASAHIRO; NAKAGAWA TAKESHI; FUKAYA JUICHI; YOSHIOKA TADAHICO; HATTA BUNGO
Applicant: MITSUBISHI MATERIALS CORP; JEMCO INC; SEKISUI CHEMICAL CO LTD
Classification:
- international: C03C27/12; C08K3/10; C08K3/24; C08K5/00; C08L29/14; C03C27/12; C08K3/00; C08K5/00; C08L29/00; (IPC1-7): C03C27/12; C08K3/10; C08K3/24; C08L29/14
- european: B32B17/10E26; B32B17/10G
Application number: JP20030427446 20031224
Priority number(s): JP20030427446 20031224

Also published as:

 WO2005061405 (A)[Report a data error here](#)**Abstract of JP2005187226**

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a tin-doped indium oxide (ITO) particulate dispersion excellent in the dispersibility of an ITO particulate and capable of yielding a highly transparent heat-shielding glass laminate; a glass laminate interlayer containing the ITO particulate; and a glass laminate.

SOLUTION: The tin-doped indium oxide particulate dispersion is characterized by the following: the measured reflection value of the dispersion at 0 degree is 30 or less in the reflection light distribution at a incident angle of 45 degree by reflection measurement with a goniophotometer; the dispersion contains a tin-doped indium oxide particulate, a plasticizer for an interlayer, an organic solvent mainly comprising an alcohol, and a dispersion stabilizer; and under measuring conditions with a tin-doped indium oxide particulate concentration of 0.7 wt.% and an optical path length of a glass cell of 1 mm, the visible light transmittance is 80% or higher, the insolation transmittance in a wavelength range of 300-2,100 nm is 3/4 or lower of the visible light transmittance, the haze value is 1.0% or lower, and the reflection yellow index is 20 or higher. The glass laminate interlayer uses the tin-doped indium oxide particulate dispersion. The glass laminate uses the glass laminate interlayer.

COPYRIGHT: (C)2005,JPO&NCIP

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2005-187226

(P2005-187226A)

(43) 公開日 平成17年7月14日(2005.7.14)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C03C 27/12	C03C 27/12 D	4G061
C08K 3/10	C03C 27/12 L	4J002
C08K 3/24	C08K 3/10	
C08L 29/14	C08K 3/24	
	C08L 29/14	
審査請求 未請求 請求項の数 26 O L (全 27 頁)		

(21) 出願番号	特願2003-427446 (P2003-427446)	(71) 出願人	000006264
(22) 出願日	平成15年12月24日 (2003.12.24)		三菱マテリアル株式会社
			東京都千代田区大手町1丁目5番1号
		(71) 出願人	597065282
			株式会社ジェムコ
			秋田県秋田市沢島三丁目1番6号
		(71) 出願人	000002174
			積水化学工業株式会社
			大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号
		(74) 代理人	100088719
			弁理士 千葉 博史
		(72) 発明者	萩原 正弘
			茨城県鹿島郡神栖町東深芝19番1号 株
			式会社ジェムコ鹿島工場内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液とその製造方法、および該分散液を用いた熱線遮蔽性を有する合わせガラス用中間膜、ならびにその合わせガラス

(57) 【要約】

【課題】 ITO微粒子の分散性に優れ、高い透明性を有する熱遮断性合わせガラスを得ることができるITO微粒子分散液、およびITO微粒子を含有する合わせガラス用中間膜、合わせガラスを提供する。

【解決手段】 錫ドーブ酸化インジウム微粒子、中間膜用可塑剤、アルコール類を主成分とする有機溶剤、および分散安定剤を含有し、錫ドーブ酸化インジウム微粒子濃度0.7重量%およびガラスセルの光路長1mmの測定条件下において、可視光透過率が80%以上、300nm～2100nmの波長領域の日射透過率が可視光透過率の3/4以下、ヘイズが1.0%以下であって、反射イエローインデックスが-20以上であることを特徴とし、変角光度計による反射測定で入射角45度における反射光分布のうち0度の反射測定値が30以下であることを特徴とする錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液、ITO微粒子分散液を用いた合わせガラス用中間膜、並びに合わせガラス。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

錫ドープ酸化インジウム微粒子、中間膜用可塑剤、アルコール類を主成分とする有機溶剤、および分散安定剤を含有し、錫ドープ酸化インジウム微粒子濃度 0.7 重量% およびガラスセルの光路長 1 mm の測定条件下において、可視光透過率が 80 % 以上、300 nm ~ 2100 nm の波長領域の日射透過率が可視光透過率の 3/4 以下、ヘイズが 1.0 % 以下であって、反射イエローインデックスが -20 以上であることを特徴とする錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項 2】

請求項 1 の錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液において、反射イエローインデックスが -20 以上であることに代えて、あるいは反射イエローインデックスが -20 以上であると共に、ガラスセルの光路長 1 mm の測定条件下において、変角光度計による反射測定で入射角 45 度における反射光分布のうち 0 度の反射測定値が 30 以下であることを特徴とする錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項 3】

中間膜用可塑剤が、ジヘキシルアジペート、トリエチレングリコール-2-エチルヘキサノエート、テトラエチレングリコール-2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコール-2-エチルブチレート、テトラエチレングリコール-2-エチルブチレート、テトラエチレングリコール-ヘプタノエート、およびトリエチレングリコール-ヘプタノエートからなる群より選択される少なくとも 1 種である請求項 1 または請求項 2 の何れかに記載する錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項 4】

アルコール類が、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、n-ブタノール、イソブタノール、sec-ブタノール、tert-ブタノール、ラウリルアルコール、ジアセトンアルコール、シクロヘキサノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、およびトリエチレングリコールからなる群より選択される少なくとも 1 種である請求項 1 から請求項 3 までの何れかに記載する錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項 5】

分散安定剤が、窒素、リン、およびカルコゲン系原子群からなる群より選択される少なくとも 1 種の原子を有する化合物である請求項 1 から請求項 4 までの何れかに記載する錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項 6】

請求項 5 の分散安定剤が、硫酸エステル系化合物、リン酸エステル系化合物、リシノール酸、ポリリシノール酸、ポリカルボン酸、多価アルコール型界面活性剤、ポリビニルアルコール、およびポリビニルブチラールからなる群より選択される少なくとも 1 種である錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項 7】

分散安定剤が、キレート、無機酸、および有機酸からなる群より選択される少なくとも 1 種である請求項 1 から請求項 6 までの何れかに記載する錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項 8】

分散安定剤として、リン酸エステル系化合物、有機酸、およびキレートの三成分を含む請求項 1 から請求項 7 までの何れかに記載する錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項 9】

錫ドープ酸化インジウム微粒子の濃度 0.1 ~ 95 重量%、中間膜用可塑剤の含有量 1 ~ 99.9 重量%、アルコール類を主成分とする有機溶剤の含有量 0.02 ~ 25 重量%、分散安定剤 0.0025 ~ 30 重量% である請求項 1 から請求項 8 までの何れかに記載する錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項 10】

錫ドープ酸化インジウム微粒子、中間膜用可塑剤、アルコール類を主成分とする有機溶

剤、および分散安定剤を含有し、錫ドーブ酸化インジウム微粒子の濃度が0.1重量%～95重量%であるものを、中間膜用可塑剤、またはアルコール類を主成分とする有機溶剤および/もしくは分散安定剤を含有する中間膜用可塑剤によって希釈してなる請求項1から請求項9までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項11】

錫ドーブ酸化インジウム微粒子の濃度が10.0重量%以上であるものを希釈して錫ドーブ酸化インジウム微粒子濃度を10.0重量%としたときに、あるいは錫ドーブ酸化インジウム微粒子の濃度が40.0重量%以上であるものを希釈して錫ドーブ酸化インジウム微粒子濃度を40.0重量%としたときに、錫ドーブ酸化インジウム微粒子の体積平均粒径が80nm以下であり、累積90%粒径(D₉₀)が160nm以下である請求項1から請求項10までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項12】

錫ドーブ酸化インジウム微粒子の一次平均粒径が0.2μm以下である請求項1から請求項11までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項13】

錫ドーブ酸化インジウム微粒子結晶の格子定数が10.11～10.16Åである請求項1から請求項12までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

【請求項14】

請求項1から請求項13までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液を製造する方法であって、アルコール類を主成分とする有機溶剤、分散安定剤、錫ドーブ酸化インジウム微粒子、および中間膜用可塑剤を混合し、錫ドーブ酸化インジウム微粒子を分散させることを特徴とする錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液の製造方法。

【請求項15】

アルコール類を主成分とする有機溶剤、分散安定剤、および錫ドーブ酸化インジウム微粒子を含有する混合液を調製し、この混合液と中間膜用可塑剤とを混合して錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液にする請求項14に記載する製造方法。

【請求項16】

アルコール類を主成分とする有機溶剤、分散安定剤、および錫ドーブ酸化インジウム微粒子を含有する混合液を調製し、この混合液を中間膜用可塑剤に加えて、またはこの混合液に中間膜用可塑剤を加えて、錫ドーブ酸化インジウム微粒子を分散させる請求項15に記載する製造方法。

【請求項17】

中間膜用可塑剤として、アルコール類を主成分とする有機溶剤もしくは分散安定剤を含有するものを用いる請求項15または請求項16の何れかに記載する製造方法。

【請求項18】

請求項1から請求項13までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液と樹脂とを混合してなる樹脂組成物によって形成された熱線遮蔽合わせガラス用の中間膜であって、この膜厚0.76mmの中間膜を厚さ2.5mmのクリアガラスに挟み込んだ測定条件下において、周波数0.1MHz～26.5GHzにおける電磁波シールド性能が10dB以下、ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、300～2100nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の80%以下であって、かつ反射イエローインデックスが-12以上であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

【請求項19】

請求項18の合わせガラス用中間膜において、反射イエローインデックスが-12以上であることに代えて、あるいは反射イエローインデックスが-12以上であると共に、変角光度計による反射測定で入射角45度における反射光分布のうち0の反射測定値が25以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

【請求項20】

ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、中間膜用可塑剤20～60重量部、錫ドーブ酸化インジウム微粒子0.1～3重量部を含有する請求項18または請求項19

の何れかに記載する合わせガラス用中間膜。

【請求項 2 1】

ポリビニルアセタール樹脂がポリビニルブチラール樹脂である請求項 2 0 の合わせガラス用中間膜。

【請求項 2 2】

錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液と樹脂とを混合してなる樹脂組成物が、さらに接着剤調整剤として、アルカリ金属塩および/またはアルカリ土類金属塩を含む請求項 1 8 から請求項 2 1 までの何れかに記載する合わせガラス用中間膜。

【請求項 2 3】

錫ドープ酸化インジウム微粒子は、平均粒径が 8 0 nm 以下であり、かつ、粒径 1 0 0 nm¹⁰ 以上の粒子の割合が 1 個/ μm^2 以下であるように分散している請求項 1 8 から請求項 2 2 までの何れかに記載する合わせガラス用中間膜。

【請求項 2 4】

請求項 1 8 から請求項 2 3 までの何れかに記載する合わせガラス用中間膜を用いてなることを特徴とする合わせガラス。

【請求項 2 5】

請求項 2 4 に記載する合わせガラスであって、周波数 0 . 1 MHz ~ 2 6 . 5 GHz における電磁波シールド性能が 1 0 dB 以下、ヘイズが 1 . 0 % 以下、可視光透過率が 7 0 % 以上、3 0 0 ~ 2 1 0 0 nm の波長領域での日射透過率が可視光透過率の 8 0 % 以下であって、かつ反射イエローインデックスが - 1 2 以上である熱線遮蔽性を有することを特徴とする合わせガラス。²⁰

【請求項 2 6】

請求項 2 5 の合わせガラスにおいて、反射イエローインデックスが - 1 2 以上であることに代えて、あるいは反射イエローインデックスが - 1 2 以上であると共に、変角光度計による反射測定で入射角 4 5 度における反射光分布のうち 0 度の反射測定値が 2 5 以下であることを特徴とする合わせガラス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、合わせガラス用中間膜の製造に用いることができる錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液とその分散液の製造方法、および熱線遮蔽性を有する合わせガラス用中間膜とその合わせガラスに関する。³⁰

【背景技術】

【0 0 0 2】

一般に、合わせガラスは、少なくとも一対のガラス間に、例えば、可塑剤により可塑化されたポリビニルブチラール樹脂等のポリビニルアセタール樹脂からなる合わせガラス用中間膜（以下、単に中間膜とも云う）を介在させて一体化させた構造を有している。このような構造の合わせガラスは、外部衝撃を受けて破損してもガラスの破片が飛散することが少なく、安全であるために自動車等の車両、航空機、建築物等の窓ガラス等として広く使用されている。⁴⁰

【0 0 0 3】

しかし、従来、このような中間膜を用いた合わせガラスは安全性に優れているが遮熱性に劣るという問題点があった。一般に、波長が可視光より長い 7 8 0 nm 以上の赤外線は、紫外線と比較するとエネルギー量が約 1 0 % 程度と小さいが、熱的作用が大きく、いったん物質に吸収されると、熱として放出され温度上昇をもたらすことから、熱線と呼ばれている。この熱線を効果的に遮蔽できる合わせガラスが求められている。例えば、自動車のフロントガラスやサイドガラスから入射する光線のうち、熱的作用の大きな赤外線を遮断できるようにすれば、遮熱性が高まり、自動車内部の温度上昇を抑えることができる。近年の傾向として、自動車等におけるガラス開口部面積が増大しており、合わせガラスの遮⁵⁰

熱性を高くし、ガラス開口部に熱線カット機能を付与する必要性が増大している。

【0004】

遮熱性を高めた合わせガラスとしては、錫ドープ酸化インジウム微粒子（以下、ITO微粒子とも云う）を分散させた可塑剤を透明樹脂に添加し、この透明樹脂からなる中間膜を用いた合わせガラスが知られている（特許文献1）。この合わせガラス用中間膜としては、透明性を損なわないようにITO微粒子の粒径を $0.1\mu\text{m}$ 以下に限定し、このITO微粒子をアニオン系界面活性剤と共に可塑剤のフタル酸ジ-2-エチルヘキシルに混合して分散させたITO微粒子分散液を調製し、この分散液をポリビニルブチラール樹脂に練り込んでフィルム化したものなどが開示されている。

【0005】

また、遮熱性を有する合わせガラス用の中間膜組成物として、ITO微粒子と高級脂肪酸エステル、および可塑剤を含む分散液を樹脂に混合したものが知られている（特許文献2）。この中間膜組成物では、ITO微粒子の分散性を高めるために、ポリグリセリン脂肪酸エステルなどの高級脂肪酸エステルを分散液に添加している。

【0006】

しかし、従来の合わせガラス用中間膜組成物、あるいはこの中間膜組成物に用いるITO微粒子分散液は、透明性の指標であるヘーズが同一でも、角度をつけてみると白濁して透明性が悪いことがある。また、ITO微粒子を可塑剤に分散する際に一般的な分散剤を用いると合わせガラスのガラスと中間膜の界面の接着力の調整が困難であると云う問題があった。また、中間膜の含水率変化によるガラスと中間膜の間の接着力の変動を制御するのにも困難になるという問題がある。さらに、ITO微粒子分散液を中間膜用可塑剤で希釈すると、ITO微粒子の分散が崩れて凝集粒子になる、いわゆるソルベントショックの現象を引き起こし、透明性を低下させる原因になるなどの問題があった。

【0007】

一方、ITO微粒子をポリリン酸エステルおよびアセチルアセトンに分散させた液に可塑剤のトリエチレングリコール-ジ-2-ヘキサノエート(3GO)を添加したもの（特許文献3）や、これにさらに2-エチルヘキサン酸を加えたもの（特許文献4）が知られている。しかし、これらの組成物は何れもアルコール類が含まれていないので疎水性が高く、このためITO微粒子が液に馴染み難く、ソルベントショックを起こしやすい等の欠点がある。また、中間膜可塑剤の種類による分散液の特性の変動が大きいという欠点もある。

【特許文献1】特許3040681号公報

【特許文献2】特開2001-233643号公報

【特許文献3】特開2002-293583号公報

【特許文献4】特開2001-302289号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明は、熱線遮蔽性を有するITO微粒子分散液、ないし該分散液を用いた中間膜等について、従来の上記問題を解決したものであって、ヘーズを一定値以下にすると共に、変角光度測定における反射測定値を指標とし、あるいは上記反射測定値と相関を有する反射イエローインデックス(YI)を指標とし、これらの値を一定範囲に制御することによって透明性および熱遮断性に優れたITO微粒子分散液を提供するものであり、また上記ITO微粒子分散液を混合した中間膜、この中間膜を用いた熱線遮蔽性合わせガラスを提供するものである。

【0009】

さらに本発明は、分散安定剤の組み合わせによって接着力の調整を容易にし、またITO微粒子の分散性に優れ、かつ中間膜の含水率変化によるガラスと中間膜界面の接着強度の変動も抑制しやすいという利点を有し、さらにソルベントショックを生じ難いITO微粒子分散液、このITO微粒子分散液を混合した中間膜、この中間膜を用いた熱線遮蔽性合わせガラスを提供するものである。

【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明は以下の錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液とその製造方法に関する。

(1) 錫ドーブ酸化インジウム微粒子、中間膜用可塑剤、アルコール類を主成分とする有機溶剤、および分散安定剤を含有し、錫ドーブ酸化インジウム微粒子濃度0.7重量%およびガラスセルの光路長1mmの測定条件下において、可視光透過率が80%以上、300nm~2100nmの波長領域の日射透過率が可視光透過率の3/4以下、ヘイズが1.0%以下であって、反射イエローインデックスが-20以上であることを特徴とする錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

(2) 上記(1)の錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液において、反射イエローインデックスが-20以上であることに代えて、あるいは反射イエローインデックスが-20以上であると共に、ガラスセルの光路長1mmの測定条件下において、変角光度計による反射測定で入射角45度における反射光分布のうち0度の反射測定値が30以下であることを特徴とする錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。 10

(3) 中間膜用可塑剤が、ジヘキシルアジペート、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、テトラエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、テトラエチレングリコールジ-ヘプタノエート、およびトリエチレングリコールジ-ヘプタノエートからなる群より選択される少なくとも1種である上記(1)または上記(2)の何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。 20

(4) アルコール類が、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、n-ブタノール、イソブタノール、sec-ブタノール、tert-ブタノール、ラウリルアルコール、ジアセトンアルコール、シクロヘキサノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、およびトリエチレングリコールからなる群より選択される少なくとも1種である上記(1)から上記(3)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

(5) 分散安定剤が、窒素、リン、およびカルコゲン系原子群からなる群より選択される少なくとも1種の原子を有する化合物である上記(1)から上記(4)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

(6) 上記(5)の分散安定剤が、硫酸エステル系化合物、リン酸エステル系化合物、リシノール酸、ポリリシノール酸、ポリカルボン酸、多価アルコール型界面活性剤、ポリビニルアルコール、およびポリビニルブチラールからなる群より選択される少なくとも1種である錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。 30

(7) 分散安定剤が、キレート、無機酸、および有機酸からなる群より選択される少なくとも1種である上記(1)から上記(6)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

(8) 分散安定剤として、リン酸エステル系化合物、有機酸、およびキレートの三成分を含む上記(1)から上記(7)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

(9) ITO微粒子の濃度0.1~95重量%、中間膜用可塑剤の含有量1~99.9重量%、アルコール類を主成分とする有機溶剤の含有量0.02~25重量%、分散安定剤0.0025~30重量%である上記(1)から上記(8)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。 40

【0011】

(10) 錫ドーブ酸化インジウム微粒子、中間膜用可塑剤、アルコール類を主成分とする有機溶剤、および分散安定剤を含有し、錫ドーブ酸化インジウム微粒子の濃度が0.1重量%~95重量%であるものを、中間膜用可塑剤、またはアルコール類を主成分とする有機溶剤および/もしくは分散安定剤を含有する中間膜用可塑剤によって希釈してなる上記(1)から上記(9)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

(11) 錫ドーブ酸化インジウム微粒子の濃度が10.0重量%以上であるものを希釈して錫ドーブ酸化インジウム微粒子濃度を10.0重量%としたときに、あるいは錫ド 50

ープ酸化インジウム微粒子の濃度が40.0重量%以上であるものを希釈して錫ドーブ酸化インジウム微粒子濃度を40.0重量%としたときに、錫ドーブ酸化インジウム微粒子の体積平均粒径が80nm以下であり、累積90%粒径(D90)が160nm以下である上記(1)から上記(10)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

(12) 錫ドーブ酸化インジウム微粒子の一次平均粒径が0.2 μ m以下である上記(1)から上記(11)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

(13) 錫ドーブ酸化インジウム微粒子結晶の格子定数が10.11~10.16Åである上記(1)から上記(12)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液。

【0012】

(14) 上記(1)から上記(13)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液を製造する方法であって、アルコール類を主成分とする有機溶剤、分散安定剤、錫ドーブ酸化インジウム微粒子、および中間膜用可塑剤を混合し、錫ドーブ酸化インジウム微粒子を分散させることを特徴とする錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液の製造方法。

(15) アルコール類を主成分とする有機溶剤、分散安定剤、および錫ドーブ酸化インジウム微粒子を含有する混合液を調製し、この混合液と中間膜用可塑剤とを混合して錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液にする上記(14)に記載する製造方法。

(16) アルコール類を主成分とする有機溶剤、分散安定剤、および錫ドーブ酸化インジウム微粒子を含有する混合液を調製し、この混合液を中間膜用可塑剤に加えて、またはこの混合液に中間膜用可塑剤を加えて、錫ドーブ酸化インジウム微粒子を分散させる上記(15)に記載する製造方法。

(17) 中間膜用可塑剤として、アルコール類を主成分とする有機溶剤もしくは分散安定剤を含有するものを用いる上記(15)または上記(16)の何れかに記載する製造方法。

【0013】

また、本発明は以下の熱線遮蔽性を有する合わせガラス用中間膜、ならびにその合わせガラスに関する。

(18) 上記(1)から上記(13)までの何れかに記載する錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液と樹脂とを混合してなる樹脂組成物によって形成された熱線遮蔽合わせガラス用の中間膜であって、この膜厚0.76mmの中間膜を厚さ2.5mmのクリアガラスに挟み込んだ測定条件下において、周波数0.1MHz~26.5GHzにおける電磁波シールド性能が10dB以下、ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、300~2100nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の80%以下であって、かつ反射イエローインデックスが-12以上であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

(19) 上記(18)の合わせガラス用中間膜において、反射イエローインデックスが-12以上であることに代えて、あるいは反射イエローインデックスが-12以上であると共に、変角光度計による反射測定で入射角45度における反射光分布のうち0度の反射測定値が25以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

(20) ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、中間膜用可塑剤20~60重量部、錫ドーブ酸化インジウム微粒子0.1~3重量部を含有する上記(18)または上記(19)の何れかに記載する合わせガラス用中間膜。

(21) ポリビニルアセタール樹脂がポリビニルブチラール樹脂である上記(20)の熱線遮蔽合わせガラス用中間膜。

(22) 錫ドーブ酸化インジウム微粒子分散液と樹脂とを混合してなる樹脂組成物が、さらに接着力調整剤として、アルカリ金属塩および/またはアルカリ土類金属塩を含む上記(18)から上記(21)までの何れかに記載する合わせガラス用中間膜。

(23) 錫ドーブ酸化インジウム微粒子は、平均粒径が80nm以下であり、かつ、粒径100nm以上の粒子の割合が1個/ μ m²以下であるように分散している上記(18)から上記(22)までの何れかに記載する合わせガラス用中間膜。

【0014】

(24) 上記(18)から上記(23)までの何れかに記載する合わせガラス用中間膜を用いてなることを特徴とする合わせガラス。

(25) 上記(24)に記載する合わせガラスであって、周波数0.1 MHz～26.5 GHzにおける電磁波シールド性能が10 dB以下、ヘイズが1.0 %以下、可視光透過率が70 %以上、300～2100 nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の80 %以下であって、かつ反射イエローインデックスが-12以上である熱線遮蔽性を有することを特徴とする合わせガラス。

(26) 上記(25)の合わせガラスにおいて、反射イエローインデックスが-12以上であることに代えて、あるいは反射イエローインデックスが-12以上であると共に、変角光度計による反射測定で入射角45度における反射光分布のうち0度の反射測定値が25以下であることを特徴とする合わせガラス。

【0015】

10

以下、本発明を具体的に説明する。

本発明の錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液は、錫ドープ酸化インジウム微粒子、中間膜用可塑剤、アルコール類を主成分とする有機溶剤（以下、アルコール性溶剤とも云う）、および分散安定剤を含有する錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液（以下、ITO微粒子分散液とも云う）であって、錫ドープ酸化インジウム微粒子濃度0.7重量%およびガラスセルの光路長1 mmの測定条件下において、可視光透過率が80 %以上、300 nm～2100 nmの波長領域の日射透過率が可視光透過率の3/4以下、ヘイズが1.0 %以下、反射イエローインデックスが-20以上であることを特徴とするものである。

【0016】

また、本発明のITO微粒子分散液は、上記反射イエローインデックスが-20以上であることに代えて、あるいは反射イエローインデックスが-20以上であると共に、変角光度計による反射測定で入射角45度における反射光分布のうち0度の反射測定値が30以下であることを特徴とするものである。

【0017】

上記ITO微粒子は、一次平均粒子径が0.2 μm以下であることが好ましい。一次平均粒子径が0.2 μmを超えると、得られる中間膜、ひいては合わせガラスのヘイズが悪化したり、ITO微粒子による可視光線の散乱による白濁が生じたりすることがある。より好ましくは0.1 μm以下であり、更に好ましくは0.08 μm以下である。また、上記ITO微粒子は、その結晶の格子定数が10.11 Å～10.16 Åの範囲内であるものが好ましい。この範囲外であると十分な熱線カット効果が得られないことがある。

30

【0018】

上記ITO微粒子を製造する方法は限定されない。例えば、塩化インジウムと少量の塩化錫の水溶液を含む水溶液をアルカリとを反応させてインジウムと錫の水酸化物を共沈させ、この共沈物を原料として酸素を除去した窒素中で加熱焼成して酸化物に変換させることによってITO微粒子を製造する方法等が挙げられる。

【0019】

本発明のITO微粒子分散液において、上記中間膜用可塑剤はITO微粒子を分散させる分散媒としての役割を有する。この中間膜用可塑剤としては、通常ポリビニルアセタール樹脂等に対して使用されるものであれば特に限定されず、中間膜用の可塑剤として一般的に用いられている公知の可塑剤であれば良く、例えば、一塩基酸エステル、多塩基酸エステル等の有機エステル系可塑剤、あるいは有機リン酸系、有機亜リン酸系等のリン酸系可塑剤等を用いることができる。

40

【0020】

上記有機エステル系可塑剤のうち、一塩基酸エステルとしては、例えば、トリエチレングリコールと、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、ヘプタン酸、n-オクチル酸、2-エチルヘキシル酸、ペラルゴン酸（n-ノニル酸）、デシル酸等の有機酸との反応によって得られたグリコール系エステル、あるいはテトラエチレングリコール、トリプロピレングリコールと上記有機酸とのエステル等が挙げられる。また、上記多塩基酸エステルとしては、例えば、アジピン酸、セバチン酸、アゼライン酸等の有機酸と、炭素数4～8の直鎖状または分岐状アルコールとのエステル等が挙げられる。

50

【0021】

上記有機エステル系可塑剤の具体例としては、例えば、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキソエート、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ-n-オクトエート、トリエチレングリコールジ-n-ヘプトエート、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプトエート、ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカルビトールアジペート、エチレングリコールジ-2-エチルブチレート、1, 3-プロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、1, 4-プロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、1, 4-ブチレングリコールジ-2-エチルブチレート、1, 2-ブチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジ-2-エチルヘキソエート、ジプロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジ-2-エチルペントエート、テトラエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジカプリエート等が挙げられる。

【0022】

上記リン酸系可塑剤としては、例えば、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリイソプロピルホスファイト等が挙げられる。

【0023】

これらの中間膜用可塑剤のなかでも、ジヘキシルアジペート(DHA)、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(4GO)、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート(3GH)、テトラエチレングリコールジ-2-エチルブチレート(4GH)、テトラエチレングリコールジ-ヘプタノエート(4G7)、およびトリエチレングリコールジ-ヘプタノエート(3G7)からなる群より選択される少なくとも1種は、接着剤調整剤として炭素数5または6のカルボン酸の金属塩を含有させることによって、中間膜とガラスとの接着力の経時低下を防止することができ、白化防止と接着力の経時低下防止を両立させることができることから好適である。これらのなかでも、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート(3GH)、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(4GO)およびジヘキシルアジペート(DHA)は加水分解を起こし難いことから特に好適である。

【0024】

本発明は有機溶剤としてアルコール類を主成分とするものを用いる。このアルコール類は限定されない。例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、n-ブタノール、イソブタノール、sec-ブタノール、tert-ブタノール、ラウリルアルコール、ジアセトンアルコール、シクロヘキサノール、エチレングリコール、ジエチレングリコールおよびトリエチレングリコールからなる群より選択される少なくとも1種が好適である。また、上記アルコール類を主成分とする有機溶剤(ie.アルコール性溶剤)がアルコール類以外の成分を少量含有する場合において、含有される成分としては、例えば、メチルエチルケトン、酢酸イソプロピル、乳酸エチル、2-ピロリドン、アセト酢酸エチルなどを用いることができる。

【0025】

アルコール類を主成分とする有機溶剤は、ITO微粒子に対して馴染みやすく、かつ中間膜可塑剤との相溶性がよいため、変角光度測定における反射測定値を30以下、好ましくは25以下に低減することができる。なお、この変角光度測定の反射測定値は、ITO微粒子分散液について、入射角45度における反射光分布のうち0度を基準とし、光路長1mmのガラスセルに満たした可塑剤をレファレンスとし、そのレファレンスを差し引いた値である。さらに、上記反射測定値と相関を有する反射イエローインデックスを-20以上に高めることができる。また、ソルベントショックを防止する効果もある。さらに、中間膜可塑剤の種類による分散液特性の変動を抑制する効果もある。

【0026】

上記分散安定剤としては、例えば、窒素、リン、およびカルコゲン系原子群からなる群より選択される少なくとも1種の原子を有する化合物が好ましい。これらの原子はITO微粒子に対して馴染みやすく、良好な分散効果を得ることができる。このような化合物としては、例えば、(I)カルボン酸塩、スルホン酸塩、硫酸エステル塩、リン酸エステル塩、重合型高分子、重縮合型高分子などの陰イオン界面活性剤、(II)エーテル、エステル、エステルエーテル、含窒素などの非イオン界面活性剤、(III)第一アミン塩ないし第三アミン塩、第四級アンモニウム塩、ポリエチレンポリアミン誘導体などの陽イオン界面活性剤、(IV)カルボキシベタイン、アミノカルボン酸塩、スルホベタイン、アミノ硫酸エステル、イミダゾリンなどの両性界面活性剤などが挙げられる。なかでも、硫酸エステル系化合物、リン酸エステル系化合物、リシノール酸、ポリリシノール酸、ポリカルボン酸、多価アルコール型界面活性剤、ポリビニルアルコールおよびポリビニルブチラールからなる群より選択される少なくとも1種は特に好適である。

【0027】

上記リン酸エステル系化合物としては、例えば、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル、アルキルエーテルリン酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテルリン酸エステルなどが挙げられる。

【0028】

上記分散安定剤としては、また、キレート、無機酸および有機酸からなる群より選択される少なくとも1種も好適である。上記キレートは限定されず、例えば、エチレンジアミン四酢酸(EDTA)類、 β ジケトン類などを用いることができる。なかでも、上記中間膜用可塑剤や樹脂との相溶性に優れることから β ジケトン類が好ましく、そのなかでもアセチルアセトンが特に好適である。上記 β ジケトン類としては、その他にも例えば、ベンゾイルトリフルオロアセトン、ジピバロイルメタンなどを用いても良い。これらのキレートはITO微粒子の凝集を防ぎ、変角光度測定における反射測定値を低減し、また上記反射測定値と相関を有する反射イエローインデックスを高めることができる。

【0029】

上記無機酸は限定されない。例えば塩酸、硝酸などを用いることができる。また、上記有機酸も限定されない。例えば、脂肪族カルボン酸、脂肪族ジカルボン酸、芳香族カルボン酸、芳香族ジカルボン酸などを用いることができる。具体的には、例えば、安息香酸、フタル酸、サリチル酸等が挙げられる。なかでも、炭素数C2~C18の脂肪族カルボン酸が好ましく、炭素数C2~C10の脂肪族カルボン酸がより好ましい。上記炭素数C2~C10の脂肪族カルボン酸としては、例えば、酢酸、プロピオン酸、*n*-酪酸、2エチル酪酸、*n*-ヘキサン酸、2エチルヘキサン酸、*n*-オクタン酸等が挙げられる。これらの無機酸および有機酸は、ITO微粒子の凝集を防ぎ、変角光度測定における反射測定値を低減し、また上記反射測定値と相関を有する反射イエローインデックスを高めることができる。

【0030】

本発明のITO分散液において、ITO微粒子が高分散して初期の光学的な性能を発揮するためには、分散媒となる中間膜用可塑剤と分散安定剤との組み合わせが極めて重要である。例えば、上記中間膜用可塑剤としてトリエチレングリコール-2-エチルヘキサノエート(3GO)を用いる場合には、溶剤としてアルコール類を用い、分散安定剤として上記リン酸エステル系化合物、2エチルヘキサン酸等の有機酸、およびアセチルアセトン等のキレートの3成分を組み合わせ用いれば、ITO微粒子を高濃度かつ高い分散性で分散させることができ、変角光度測定による反射測定値を低減し、また上記反射測定値と相関を有する反射イエローインデックスを高めることができる。さらに中間膜用可塑剤で希釈する際のソルベントショックを防止することができる。なお、この場合、アルコール類としては、メタノール、エタノール、イソプロパノール、ジアセトンアルコールなどが好ましい。

【0031】

なお、ITO微粒子をポリリン酸エステルおよびアセチルアセトンに分散させた液に可

塑剤の 3 GO を添加したものや、さらに 2-エチルヘキサン酸を加えたものが知られているが、これらの組成物はアルコール類が含まれていないので疎水性が高く、このため ITO 微粒子が馴染み難く、ソルベントショックを起こしやすい等の欠点がある。また、中間膜可塑剤の種類による分散液の特性の変動が大きく、制御し難い。

【0032】

また、上記リン酸エステル系化合物、2-エチルヘキサン酸等の有機酸、およびアセチルアセトン等のキレート剤の 3 成分を併用する分散系は、これによって得られる中間膜とガラス界面の接着力の制御を容易にするという優れた効果もある。合わせガラスにおいて中間膜とガラス界面の接着強度は、低過ぎるとガラスと中間膜の界面において剥離を引き起こし、高過ぎると合わせガラスの耐貫通性を低下させてしまうので、中間膜とガラス界面の接着強度を容易に調整することができる利点は大きい。また、中間膜の含水率変化によるガラスと中間膜界面の接着強度の変動も抑制しやすいという利点もある。

【0033】

なお、キレート剤、有機酸、無機酸以外の上記分散安定剤は、有機界面と無機界面間の相互作用を強固にする界面活性剤的な働きを有するため、中間膜とガラスの界面の接着力を強くしてしまう。その結果、アルカリ金属塩および／またはアルカリ土類金属塩等の接着剤調整剤だけでは、ガラスと中間膜の接着力を適度に制御することが難しく、とりわけ接着力を低めに制御するのが困難である。しかし、上記 3 成分を併用する場合には、中間膜とガラス界面の接着力を制御するためのアルカリ金属塩および／またはアルカリ土類金属塩等の接着剤調整剤にこれらの成分が配位することによって接着剤調整剤の調整力を強化するものと推定され、この結果、上述のように分散安定剤によってガラスと中間膜界面の接着力が強くなってしまいう条件下においても接着力を制御することができる。

【0034】

本発明の ITO 微粒子分散液は、ITO 微粒子濃度を 0.7 重量%とし、光路長 1 mm のガラスセルを用いて測定したときに、可視光透過率が 80%以上、300 nm ~ 2100 nm の波長領域の日射透過率が可視光透過率の 3/4 以下、ヘイズが 1.0%以下であって、反射イエローインデックスが -20 以上である。あるいは上記測定条件下で変角光度測定による反射測定値が 30 以下である。

【0035】

このうちヘイズと反射イエローインデックスおよび変角光度測定による反射測定値は、いずれも ITO 微粒子の ITO 微粒子分散液中における分散状態を反映する。また、可視光線透過率と日射透過率との関係は ITO 微粒子自体の遮熱性能を反映する。この可視光透過率および日射透過率は日本工業規格 (JIS R 3106) によって測定することができる。ヘイズは日本工業規格 (JIS K 7105) に準じた方法により測定することができる。

【0036】

本発明の ITO 微粒子分散液において、可視光透過率が 80%未満であると、得られる中間膜ひいては合わせガラスの可視光線透過率が劣ることがある。また、300 nm ~ 2100 nm の波長領域の日射透過率が可視光透過率の 3/4 を超えると、得られる中間膜ひいては合わせガラスの遮熱性が劣ることがある。

【0037】

また、本発明の ITO 微粒子分散液は反射イエローインデックスが -20 以上である。この反射イエローインデックスは日本工業規格 (JIS K 7103) に示される下記式により算出することができる。ここで、式中の X、Y、Z は標準光 C における試験用試料の反射測定による 3 刺激値を表す。

$$\text{反射イエローインデックス} = 100 (1.28 X - 1.06 Z) / Y$$

【0038】

二次凝集した ITO 微粒子は可視光短波長の散乱を引き起こし、光源下において、その分散系の白濁を誘発する。これは、ITO 微粒子が二次凝集すると粒径が大きくなり、可視光の短波長の散乱を起こすからである。また、凝集体の数が多いとそれに比例し、可視光短波長の反射率も高くなり、白濁度も増す。ここで、ITO 微粒子分散液および ITO

微粒子を含有する中間膜の可視光短波長の反射率(Z)はその分散系におけるITO微粒子の白濁度に比例すると考えられる。即ち、可視光短波長の反射率(Z)とITO微粒子の二次凝集の度合いは比例し、分散性が悪いと可視光線短波長の反射率(Z)が大きくなると考えられる。一方、同一のITO濃度では可視光中波長域、可視光長波長域の吸収はほぼ同じであり、X、Yはほぼ同じである。従って、同一のITO濃度では、可視光短波長の反射率(Z)が大きくなるほど反射イエローインデックスの値は小さくなり、白濁度は増加するので、この反射イエローインデックス(YI)を指標としてITO微粒子の分散性を把握することができ、またITO微粒子分散液やITO微粒子を含有する中間膜の透明性を把握することができる。なお、ITO微粒子の濃度が異なるときには、X、Yの値が変化し、反射イエローインデックスの水準が変化するので単純に相対比較はできない。

10

【0039】

ITO微粒子分散液のヘイズが1.0%を超えるか、または反射イエローインデックスが-20未満であると、ITO微粒子の分散状態が不十分であり、得られる中間膜、ひいては合わせガラスのヘイズ、および反射イエローインデックスが劣る。また、変角光度の反射測定値が30を上回るものは、角度をつけてみると白濁して透明性が低い。

【0040】

本発明のITO微粒子分散液は、可視光透過率(Tv)、日射透過率(Ts)、ヘイズ、反射イエローインデックスないし変角光度計による反射率が上記範囲内であれば、ITO微粒子の濃度は限定されない。また、中間膜用可塑剤、アルコール類を主成分とする有機溶剤、分散安定剤はこの分散液に含まれていればよく、その含有量は限定されない。

20

【0041】

なお、ITO微粒子の濃度の好ましい範囲は下限が0.1重量%であって上限が95.0重量%である。上記ITO微粒子の濃度がこの範囲外であると、ITOを均一に分散するのが困難になることがある。この濃度のより好ましい下限は10重量%、より好ましい上限は60重量%である。

【0042】

また、概ね中間膜用可塑剤の含有量は1~99.9重量%、アルコール類を主成分とする有機溶剤の含有量は0.02~25重量%、分散安定剤は0.0025~30重量%が適当であり、好ましくは、ITO微粒子の濃度10~60重量%、中間膜用可塑剤の含有量10~85重量%、アルコール類を主成分とする有機溶剤の含有量0.5~10重量%、分散安定剤0.02~20重量%が適当である。

30

【0043】

本発明のITO微粒子分散液は、ITO微粒子濃度が10.0~95.0重量%であるITO微粒子分散液を長期間放置したとき、または上記中間膜用可塑剤を用いてITO微粒子濃度を40.0重量%に希釈したときに、ITO微粒子の体積平均粒子径が80nm以下であり、累積90%粒径(D90)が160nm以下であることが好ましい。体積平均粒子径が80nmを超えるか、またはD90が160nmを超えると、樹脂と混合して中間膜を製造したときに、中間膜中におけるITO微粒子の平均粒子径が大きくなり、透明性等が劣ることがある。本発明のITO微粒子分散液は、ITO微粒子濃度を10.0重量%に希釈した場合にも、ITO微粒子の体積平均粒子径が80nm以下であり、D90が160nm以下であることがより好ましい。なお、このITO微粒子分散液は、部分的または全体的に固化していても、強い攪拌もしくは振とうによって液性が回復し、体積平均粒子径が80nm以下であって、累積90%粒径(D90)が160nm以下になるものであれば良い。

40

【0044】

本発明のITO微粒子分散液を製造する方法としては特に限定されないが、上記アルコールを主成分とする有機溶剤(ie.アルコール性溶剤)、分散安定剤、ITO微粒子および中間膜用可塑剤を混合してITO微粒子を分散させる方法が好適である。本発明はこのようなITO微粒子分散液の製造方法を含む。

【0045】

本発明のITO微粒子分散液の製造方法において、アルコール性溶剤、分散安定剤、I

50

ITO微粒子、および中間膜用可塑剤を混合する具体的な態様としては、これらを同時に混合する場合のほかに、例えば、アルコール性溶剤、分散安定剤、および錫ドープ酸化インジウム微粒子を含有する混合液を予め調製し、この混合液を中間膜用可塑剤に加えることによって錫ドープ酸化インジウム微粒子をこの中間膜用可塑剤に分散させても良く、または、上記混合液に中間膜用可塑剤を加えることによって錫ドープ酸化インジウム微粒子をこの中間膜用可塑剤に分散させても良い。さらに、この中間膜用可塑剤としてはアルコール性溶剤および/または分散安定剤を含有するものを用いても良い。また、アルコール類を主成分とする有機溶剤が所定の濃度になるまで揮発させて分散液の組成比を調整しても良い。

【0046】

10

本発明のITO微粒子分散液は、このように予め高濃度のITO微粒子が分散した混合液を調製し、この混合液を、中間膜用可塑剤、またはアルコール性溶剤ないし分散安定剤を含有する中間膜用可塑剤によって所定の濃度にまで希釈してもよい。本発明のITO微粒子分散液は、このような希釈によっても、中間膜用可塑剤、アルコール性溶剤および分散安定剤の種類を適宜に選択することによって、ソルベントショックを引き起こさず、ITO微粒子の体積平均粒子径が80nm以下であって、累積90%粒径(D90)が160nm以下のITO微粒子分散液を得ることができる。

【0047】

本発明のITO微粒子分散液の製造方法において、混合・分散に用いる装置は限定されない。例えば、押出機、プラストグラフ、ボールミル、ビーズミル、サンドグラインダー、ニーダー、バンバリーミキサー、カレンダーロールなどを用いることができる。

20

【0048】

本発明のITO微粒子分散液と樹脂とを混合した樹脂組成物を用いることによって熱線遮蔽性を有する合わせガラス用中間膜を製造することができる。この合わせガラスはITO微粒子が高分散することから、優れた光学特性と遮熱性とを有することができる。

【0049】

上記中間膜において、ITO微粒子は平均粒子径が80nm以下であるように分散していることが好ましい。平均粒子径が80nmを超えると、ITO微粒子による可視光線の散乱が顕著になり、得られる中間膜の透明性が損なわれることがある。その結果、合わせガラスとしたときにヘイズが悪化して、例えば、自動車のフロントガラス等で要求されるような高度な透明性が得られなくなる。

30

【0050】

さらに、上記中間膜において、ITO微粒子の分散状態は、粒子径100nm以上の粒子の割合が1個/ μm^2 以下であるように分散していることが好ましい。即ち、透過型電子顕微鏡で熱線遮蔽合わせガラス用中間膜を撮影、観察したときに、粒子径100 μm 以上のITO微粒子が観察されないか、または、観察された場合には1 μm^2 の枠内に粒子径100 μm 以上のITO粒子が1個以外は他に観察されない状態となるよう分散しているものである。このような分散状態の中間膜を用いて合わせガラスを製作したときに、低ヘイズで透明性に優れ、全体に渡って高い遮熱性が得られる。なお、透過型電子顕微鏡による観察は、例えば透過型電子顕微鏡（日立製作所社製H-7100FA型等）を用いて、加速電圧100kVで撮影することにより行うことができる。

40

【0051】

本発明のITO微粒子分散液を混合する樹脂は限定されない。例えば、合わせガラス用中間膜の透明樹脂として一般に用いられている公知の樹脂であればよい。具体的には、例えば、ポリビニルアセタール樹脂、ポリウレタン樹脂、エチレン-酢酸ビニル樹脂、アクリル酸若しくはメタクリル酸、またはこれらの誘導体を構成単位とするアクリル系共重合樹脂、塩化ビニル-エチレン-メタクリル酸グリシジル共重合樹脂等が挙げられる。なかでもポリビニルアセタール樹脂が好適である。これら樹脂は、公知またはそれに準ずる方法で容易に製造できる。

【0052】

50

上記ポリビニルアセタール樹脂としては、ポリビニルアルコールをアルデヒドによりアセタール化して得られるポリビニルアセタール樹脂であれば特に限定されるものではないが、ポリビニルブチラールが特に好適である。上記ポリビニルアルコールは、通常酢酸ビニルを鹸化することにより得られ、鹸化度80～99.8モル%のポリビニルアルコールが一般的に用いられる。

【0053】

上記ポリビニルアセタール樹脂の分子量および分子量分布は限定されない。成形性、物性等から原料となるポリビニルアルコール樹脂の重合度の好ましい下限は200、好ましい上限は3000である。この重合度が200未満であると得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、3000を超えると樹脂膜の成形性が悪くなり、しかも樹脂膜の剛性が大きくなり過ぎ、加工性が悪くなることがある。重合度のより好ましい下限は500、より好ましい上限は2000である。

【0054】

アセタール化に用いるアルデヒドも限定されない。一般に、炭素数が1～10のアルデヒドが用いられる。具体的には、例えば、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、*n*-バレルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド、*n*-オクチルアルデヒド、*n*-ノニルアルデヒド、*n*-デシルアルデヒド、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも*n*-ブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド、*n*-バレルアルデヒドが好ましく、特に好ましくは、炭素数が4のブチルアルデヒドである。

【0055】

上記ポリビニルアセタールとしては、ブチルアルデヒドでアセタール化されたポリビニルブチラールが好ましい。また、これらのアセタール樹脂は必要な物性を考慮した上で、適当な組み合わせにてブレンドされていてもよい。更に、アセタール化時にアルデヒドを組み合わせた共ポリビニルアセタール樹脂も適宜用いることができる。本発明で用いられる上記ポリビニルアセタール樹脂のアセタール化度の好ましい下限は40%、好ましい上限は85%であり、より好ましい下限は60%、より好ましい上限は75%である。

【0056】

上記樹脂組成物は、樹脂としてポリビニルアセタール樹脂を用いる場合には、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、中間膜用可塑剤20～60重量部、ITO微粒子0.1～3重量部を含有することが好ましい。中間膜用可塑剤の配合量が20重量部未満であると耐貫通性が低下することがあり、60重量部を超えると可塑剤のブリードアウトが生じ、熱線遮蔽合わせガラス用中間膜の透明性や接着性が低下し、得られる合わせガラスの光学歪みが大きくなったりするおそれがある。中間膜用可塑剤の配合量のより好ましい下限は30重量部、より好ましい上限は60重量部である。また、ITO微粒子の配合量が0.1重量部未満であると熱線カット効果が十分に得られないことがあり、3.0重量部を超えると可視光透過率が低下し、ヘイズも大きくなってしまふことがある。

【0057】

上記樹脂組成物はさらに接着力調整剤を含有することが好ましい。上記接着力調整剤としては特に限定されないが、アルカリ金属塩および／またはアルカリ土類金属塩が好適に用いられる。上記アルカリ金属塩および／またはアルカリ土類金属塩としては特に限定されず、例えば、カリウム、ナトリウム、マグネシウム等の塩が挙げられる。上記塩を構成する酸としては特に限定されず、例えば、オクチル酸、ヘキシル酸、酪酸、酢酸、蟻酸等のカルボン酸の有機酸、または、塩酸、硝酸等の無機酸が挙げられる。

【0058】

上記アルカリ金属塩および／またはアルカリ土類金属塩のなかでも、炭素数2～16の有機酸のアルカリ金属塩およびアルカリ土類金属塩がより好ましく、さらに炭素数2～16のカルボン酸マグネシウム塩、および炭素数2～16のカルボン酸カリウム塩が好ましい。

【0059】

上記炭素数2～16の有機酸のカルボン酸マグネシウム塩またはカリウム塩としては特に限定されないが、例えば、酢酸マグネシウム、酢酸カリウム、プロピオン酸マグネシウム、プロピオン酸カリウム、2-エチルブタン酸マグネシウム、2-エチルブタン酸カリウム、2-エチルヘキサン酸マグネシウム、2-エチルヘキサン酸カリウム等が好適に用いられる。これらは単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

【0060】

上記アルカリ金属塩および／またはアルカリ土類金属塩の添加量は限定されないが、例えば、上記樹脂がポリビニルアセタール樹脂である場合、好ましい下限はポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.001重量部、好ましい上限は1.0重量部である。0.001重量部未満であると、高湿度雰囲気下で熱線遮蔽合わせガラス用中間膜周辺部の接着力が低下することがあり、1.0重量部を超えると、接着力が低くなり過ぎるうえに熱線遮蔽合わせガラス用中間膜の透明性が失われることがある。添加量のより好ましい下限は0.01重量部、より好ましい上限は0.2重量部である。

【0061】

上記樹脂組成物はさらに酸化防止剤が含有することが好ましい。上記酸化防止剤としては特に限定されず、例えば、フェノール系のものとして、2,6-Di-tert-butyl-P-cresol (BHT) (住友化学社製「スミライダーBHT」)、テトラキス-[メチレン-3-(3'-5'-ジ-tert-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン〔チバガイギー社製：イルガノックス1010〕等が挙げられる。これらの酸化防止剤は、単独で用いられてもよく、2種以上を併用してもよい。上記酸化防止剤の添加量は限定されないが、例えば上記樹脂がポリビニルアセタール樹脂からなる場合、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して好ましい下限は0.01重量部、好ましい上限は5.0重量部である。

【0062】

上記樹脂組成物はさらに紫外線吸収剤を含有することが好ましい。上記紫外線吸収剤としては特に限定されず、例えば、ベンゾトリアゾール系化合物、ベンゾフェノン系化合物、トリアジン系化合物、および、ベンゾエート系化合物等が挙げられる。

【0063】

上記ベンゾトリアゾール系化合物は特に限定されず、例えば、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール〔チバガイギー社製：TinuvinP〕、2-(2'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-tert-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール〔チバガイギー社製：Tinuvin320〕、2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール〔チバガイギー社製：Tinuvin326〕、2-(2'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-tert-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール〔チバガイギー社製：Tinuvin328〕等が挙げられる。

【0064】

上記ベンゾフェノン系化合物は特に限定されず、例えば、オクタベンゾン〔チバガイギー社製：Chimassorb81〕等が挙げられる。また、上記トリアジン系化合物としては特に限定されず、例えば、2-(4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン-2-イル)-5-[(ヘキシル)オキシ]フェノール〔チバガイギー社製：Tinuvin1577FF〕等が挙げられる。さらに、上記ベンゾエート系化合物としては特に限定されず、例えば、2,4-ジ-tert-ブチルフェニル-3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート〔チバガイギー社製：Tinuvin120〕等が挙げられる。

【0065】

上記紫外線吸収剤の添加量は限定されないが、例えば、上記樹脂がポリビニルアセタール樹脂である場合、添加量の好ましい下限はポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.01重量部、上限は5.0重量部である。0.01重量部未満であると、紫外線吸収の効果がほとんど得られない。5.0重量部を超えると、樹脂の耐候劣化を引き起こすことがある。より好ましい下限は0.05重量部、上限は1.0重量部である。

【0066】

上記樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜は、更に必要に応じて、光安定剤、界面

活性剤、難燃剤、帯電防止剤、耐湿剤、着色剤、熱線反射剤、熱線吸収剤等の添加剤を含有してもよい。なお、上記樹脂組成物中に含まれる分散安定剤は全量が本発明のITO微粒子分散液に由来するものであってもよいが、不十分な場合には別に添加してもよい。この場合の分散安定剤としては、上述のものと同様のものを用いることができる。

【0067】

本発明の上記合わせガラス用中間膜を製造する方法は特に限定されず、例えば、本発明のITO樹脂分散液を、これを最終的なITO微粒子の濃度が所期の範囲になるように、上記樹脂、および必要に応じて配合する中間膜用可塑剤および/または添加剤に加えて混合して樹脂組成物とし、押し出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法によってシート状に製膜する方法等が挙げられる。なかでも、2軸同方向による押し出し法が好ましく、ヘイズを更に良化させることができる。このようにして作製した合わせガラス用中間膜を用いて、優れた熱線遮蔽性を有する合わせガラスを製造することができる。なお、合わせガラスの製造方法は従来公知の方法でよい。

【0068】

本発明の上記合わせガラス用中間膜は、通常、積層したガラスの間に挟み込まれた状態で用いられる。ガラスとしては、例えば、高熱線吸収ガラス、クリアガラス、グリーンガラスなどが用いられる。なお、高熱線吸収ガラスとは、可視光透過率が75%以上であって900~1300nmの全波長領域において透過率が65%以下である熱線吸収ガラスを云う。

【0069】

本発明の上記中間膜ないし合わせガラスは、膜厚0.76mmの中間膜を厚さ2.5mmのクリアガラスに挟み込んだ測定条件下において、周波数0.1MHz~26.5GHzにおける電磁波シールド性能が10dB以下、ヘイズが1.0%以下、可視光透過率が70%以上、300~2100nmの波長領域での日射透過率が可視光透過率の80%以下であって、反射イエローインデックスが-12以上であり、好ましくは-10以上、より好ましくは-8以上の熱線遮蔽性を有するものである。

【0070】

電磁波シールド性能は測定周波数の電磁波が上記中間膜ないし合わせガラスを透過する際にどの程度減衰するかを表す指標になる。この電磁波シールド性能が10dB以下であると、この合わせガラスを自動車のフロントガラス等に用いた場合、車内でも問題なく近年の移動通信機器等を使用することができる。

【0071】

本発明の上記中間膜ないし合わせガラスのヘイズは1.0%以下である。1.0%を超えると、中間膜ないし合わせガラスの透明性が実用上不十分となる。

【0072】

本発明の上記中間膜ないし合わせガラスにおいて、可視光透過率は70%以上である。70%未満であると、中間膜ないし合わせガラスの透明性が実用上不十分となり、車両用フロントガラスの法規制に合格することができず、良好な視認性を妨げることになる。

【0073】

本発明の上記中間膜ないし合わせガラスは、波長領域300~2100nmでの日射透過率が可視光透過率の80%以下である。可視光透過率の80%を超えると、中間膜ないし合わせガラスの遮熱性が実用上不十分となる。

【0074】

本発明の上記中間膜ないし合わせガラスは、反射イエローインデックスが-12以上であり、好ましくは-10以上、より好ましくは-8以上である。これは、ITO微粒子による可視光の散乱が低く、白濁が少ないことを意味する。なお、反射イエローインデックスは、同一濃度・同一分散状態の場合、ITO微粒子分散体の光路長や分散媒体、ガラス材質等に依存する。ITO微粒子分散液の反射イエローインデックスは、光路長1mmのガラスセルを用い、上記分散媒での測定条件下では-20以上であるが、合わせガラスとしたときは、それより光路長が短く、また媒体に上記ポリビニルアセタール樹脂が含有され

ている。従って、合わせガラスの反射イエローインデックスは-12以上が適当である。

【0075】

さらに、本発明の上記中間膜ないし合わせガラスは、変角光度計による反射測定で入射角45度における反射光分布のうち0度の反射測定値が25以下であり、好ましくは20以下、より好ましくは15以下である。これは、ITO微粒子の二次凝集による可視光の散乱が少なく、白濁が少ないことを意味する。反射測定値が25を超えると白濁が多くなり、得られる合わせガラスの透明性が実用上不十分となる。なお、この変角光度測定の実射測定値は、上記中間膜ないし合わせガラスについて、入射角45度における反射光分布のうち0度を基準とし、クリアガラス2枚をITO微粒子が分散されていない中間膜でラミネートした合わせガラスの反射測定値をレファレンスとし、そのレファレンスを差し引いた値である。 10

【発明の効果】

【0076】

本発明によれば、錫ドープ酸化インジウム微粒子の分散性に優れ、角度をつけてみた場合でも高い透明性を有し、また溶剤ショックを生じ難く、さらに分散液と樹脂との混合時においても錫ドープ酸化インジウム微粒子の良好な分散状態を維持する錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液を得ることができる。本発明の錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液は、合わせガラス用中間膜の製造に好適であり、この分散液を用いることによって熱線遮蔽性に優れた合わせガラス用中間膜、ならびにその合わせガラスを得ることができる。 20

【発明を実施するための最良の形態】

【0077】

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明する。なお、本発明はこれらの実施例に限定されない。また、測定方法ないし評価方法はそれぞれ以下の方法によって行った。

【0078】

(ア) ITO微粒子の一次平均粒径

比表面積(BET)の測定値から次式より算出した。このようにして比表面積から求めた平均粒径は透過式電子顕微鏡から直接観察した粒径とほぼ一致することが確認されている。BET法による比表面積は、マイクロトラック社製のベータソープ自動表面積計4200型を用いて測定した。 30

$$a(\mu\text{m}) = 6 / (\rho \times B) \quad [a: \text{平均粒径}, \rho: \text{真比重}, B: \text{比表面積}(\text{m}^2/\text{g})]$$

【0079】

(イ) ITO微粒子の結晶格子定数

格子定数は、モノクロメーター付き自動X線回折装置MO3Xを使用して、高純度シリコン単結晶(99.9999%)で補正し、面指数(hkl)に対するピークから面間隔を算出し、最小自乗法により求めた。

【0080】

(ウ) ITO微粒子分散液の T_v および T_s

光路長1mmのガラスセルに入れた評価用ITO微粒子分散液(0.7重量%)を用い、自記分光光度計(日立製作所社製U-4000)によって300~2100nmの透過率を測定し、日本工業規格(JIS R 3106)に従って、380~780nmの可視光透過率(T_v)および300~2100nmの日射透過率(T_s)を求めた。 40

【0081】

(エ) ITO微粒子分散液の反射イエローインデックス

上記(ウ)と同様の分散液と測定セル、および自記分光光度計を用いて380~780nmの反射率を測定し、日本工業規格(JIS K 7103)に準拠して反射イエローインデックスを算出した。

(オ) ITO微粒子分散液のヘイズ

上記(ウ)と同様の分散液と測定セルを用い、積分式濁度計(東京電色社製)により、日本工業規格(JIS K 7105)に準拠してヘイズを測定した。 50

【0082】

(カ) ITO微粒子分散液の変角光度測定

上記(ウ)と同様の分散液と測定セルを用い、自動変角光度計（村上色彩社製GP-200）によって、光源にハロゲンランプを使用し、入射角45度における反射光分布を測定した。受光範囲は-90度～90度であり、その反射光分布のうち0度を基準として求めた。ITO微粒子を含有しない可塑剤を光路長1mmのガラスセルに封入し、0度での値を求め、この値を反射測定値のレファレンスとした。上記分散液を同様に測定し、測定数値からレファレンスを差し引いた値を反射測定値とした。なお、その他測定条件については下記条件で測定した。

光源強度：12V、50W、測定種類：反射測定、
受光器：光電子増倍管、試料あおり角：2.5度、
受光器条件：SENSITIVITY ADJ：999、HIGH VOLT ADJ：999

10

(キ) ITO微粒子分散液中のITO微粒子の粒径

日機装製マイクロトラックUPA粒度分析計を用い、ITO微粒子の濃度が10重量%になるよう調整したITO微粒子分散液について、液中のITO微粒子の粒度分布測定を行った。

【0083】

(ク) 合わせガラスのTvおよびTs

自記分光光度計（日立製作所社製U-4000）を用い、合わせガラスの300～2100nmの透過率を測定し、日本工業規格（JIS R 3106「板ガラス類の透過率・反射率・放射率・日射熱取得率の試験方法」）に従って、380～780nmの可視光透過率(Tv)、および300～2100nmの日射透過率(Ts)を求めた。

20

【0084】

(ケ) 合わせガラスの反射イエローインデックス

自記分光光度計（日立製作所社製U-4000）を用いて、380～780nmの反射率を測定し、日本工業規格（JIS K 7103）に準拠して反射イエローインデックスを算出した。

(コ) 合わせガラスのヘイズ

合わせガラスについて、積分式濁度計（東京電色社製）を用い、日本工業規格（JIS K 7105）に準拠してヘイズを測定した。

【0085】

(サ) 合わせガラスの電磁波シールド性(ΔdB)

KEC法測定（近傍界の電磁波シールド効果測定）によって、0.1～10MHzの範囲の反射損失値(dB)を、通常の板厚2.5mmのフロートガラス単板と比較し、上記周波数での差の最小・最大値を記載した。また、2～26.5GHzの範囲の反射損失値(dB)は、送信受信用の1対のアンテナ間にサンプル600mm角を立て、電波信号発生装置からの電波をスペクトルアナライザーで受信し、そのサンプルの電磁波シールド性を評価した（遠方界の電磁波測定法）。

30

【0086】

(シ) 中間膜および合わせガラスの変角光度測定

自動変角光度計（村上色彩社製GP-200）を用い、光源にハロゲンランプを使用し、入射角45度における反射光分布を測定した。受光範囲は-90度～90度であり、その反射光分布のうち0度を基準として求めた。ITO微粒子を含有しない中間膜を2枚のクリアガラスにて圧着した合わせガラスを測定し、0度での値を求め、この値を反射測定値のレファレンスとした。評価用合わせガラスの測定を行い、測定数値からレファレンスを差し引いた値を反射測定値とした。なお、その他測定条件については下記条件で測定した。

40

光源強度：12V、50W、測定種類：反射測定、
受光器：光電子増倍管、試料あおり角：2.5度、
受光器条件：SENSITIVITY ADJ：999、HIGH VOLT ADJ：999

【0087】

(ス) 中間膜中のITO微粒子の分布状態

50

ミクロトームを用いて中間膜の超薄片を作製し、この超薄片を透過型電子顕微鏡（TEM、日立製作所社製H-7100FA型）を用いて、 $3\mu\text{m}\times 4\mu\text{m}$ の範囲を $\times 20000$ 倍の倍率に拡大して撮影した。得られた像を目視にて観察して、上記範囲中にある全ITO微粒子の粒子径を測定し、体積換算平均により平均粒子径を求めた。このとき、ITO微粒子の粒子径は、微粒子の最も長い径を採った。更に、上記撮影範囲中に存在する粒子径 100nm 以上の微粒子数を求め、撮影面積 $12\mu\text{m}^2$ で除することにより、 $1\mu\text{m}^2$ 当たりの粒子径 100nm 以上の微粒子数を算出した。

【0088】

（セ）中間膜の接着性

中間膜のガラスに対する接着性をパンメル値で評価した。パンメル値が大きいほどガラスとの接着力が大きく、小さいと接着力は小さい。試験方法は次のとおりである。まず合わせガラスを $-18\pm 0.6^\circ\text{C}$ の温度に16時間放置して調整し、これを頭部が 0.45kg のハンマーで打ってガラスの粒径が 6mm 以下になるまで粉碎し、ガラスが部分剥離した後の膜の露出度をあらかじめグレード付けした限度見本で判定し、その結果を表3に従ってパンメル値として表した。中間膜の合わせガラスに対する接着力は、パンメル値が3～6になるように調整されることが好ましい。

【実施例1】

【0089】

〔ITO微粒子分散液の調製〕

ITO微粒子（一次平均粒径 20nm 、結晶格子定数 10.12\AA ）10重量部、分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル化合物1重量部、2-エチルヘキサン酸2重量部、アセチルアセトン3重量部および有機溶剤としてエタノール4重量部、トリエチレングリコールジ-2-ヘキサノエート（3GO）80重量部を混合、分散してITO微粒子分散液を調製した。この組成を表1に示した。このITO微粒子分散液をITO微粒子濃度が0.7重量%になるようにトリエチレングリコールジ-2-ヘキサノエート（3GO）で希釈して、評価用ITO微粒子分散液とした。このITO濃度0.7重量%の分散液について、可視光透過率(Tv)、日射透過率(Ts)、ヘイズ、反射イエローインデックス、変角光度測定による反射測定値を表2に示した。また、ITO濃度10重量%の分散液について、ITO粒子の体積平均粒子径および累積90%粒径を表2に示した（試料No1a）。

【0090】

また、ITO微粒子の混合量を34.5重量部とし、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル化合物、2-エチルヘキサン酸、アセチルアセトン、エタノール、3GOを各々表1に示す量とし、これらを混合してITO微粒子分散液とし、さらにこれを3GOで希釈してITO濃度0.7重量%の分散液、およびITO濃度10重量%の分散液を調製した。これらの分散液について上記試料No1aと同様に上記物性を測定し、この結果を表2に示した（試料No1b）。

【0091】

さらに、ITO微粒子の混合量を25重量部とし、表1に示す量のポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル化合物、2-エチルヘキサン酸、アセチルアセトン、エタノール、3GOを混合してITO微粒子分散液とし、これを3GOで希釈してITO濃度0.7重量%の分散液、およびITO濃度10重量%の分散液を調製した。これらの分散液について上記試料No1aと同様に物性を測定し、この結果を表2に示した（試料No1c）。

【0092】

〔ポリビニルブチラルの合成〕

純水 2890g に、平均重合度1700、鹸化度99.2モル%のポリビニルアルコール 275g を加えて加熱溶解した。この溶解液を 15°C に温度調節し、濃度35重量%の塩酸 201g とn-ブチルアルデヒド 157g を加え、 15°C を保持して反応物を析出させた。次いで、反応系を 60°C で3時間保持して反応を完了させた後、過剰の水で洗浄

して未反応の n -ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を汎用な中和剤である水酸化ナトリウム水溶液で中和し、更に、過剰の水で2時間水洗後、乾燥して、白色粉末状のポリビニルブチラール樹脂を得た。このポリビニルブチラール樹脂の平均ブチラール化度は68.5モル%であった。

【0093】

〔熱線遮蔽合わせガラス用中間膜の製造〕

ポリビニルブチラール樹脂100重量部に対して、表1に示すITO微粒子分散液（ITO濃度10重量%、試料No1a）2.8重量部を加え、このITO微粒子濃度が0.2重量%になるように3GOを加えて希釈し、さらに、マグネシウム含有量が60ppmとなるよう2-エチル酪酸マグネシウムおよび酢酸マグネシウムの混合物を添加し、これをミキシン
グロールで十分に混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、
平均膜厚0.76mmの中間膜を調製した。

【0094】

〔合わせガラスの製造〕

上記中間膜を、その両端から透明な2枚のフロートガラス（30cm×30cm×厚さ2.5mm）で挟み込み、これをゴムバック内に入れ、2660Paの真空度で20分間脱気した後、脱気したままオープンに移し、更に90℃で30分間保持しつつ真空プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスをオートクレーブ中で135℃、圧力118N/cm²の条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを得た。この合わせガラスについて、物性を測定した。この結果を表2に示した（試料No1a）。

【0095】

表1に示すITO微粒子分散液（ITO濃度34.5重量%、試料No1b）を用い、これをポリビニルブチラール樹脂に混合し、試料No1aと同量のマグネシウムを加え、ITO微粒子濃度0.7重量%、0.2重量%の中間膜（膜厚0.76mm）を調製した。この中間膜を用い、試料No1aと同様にして合わせガラスを調製した。この合わせガラスについて、物性を測定した。この結果を表2に示した（試料No1b）。

【実施例2】

【0096】

ITO微粒子として表1に示す一次粒径と格子定数のものを用い、表1に示す三成分の分散安定剤、およびアルコール類を用い、各成分を表1に示す使用量とした他は実施例1と同様にして、ITO微粒子分散液を製造した。この分散液の成分を表1に示した。この分散液を用い、表2に示すITO濃度になるように表1に記載の中間膜用可塑剤で希釈して中間膜を製造し、この中間膜を用いて合わせガラスを製造した。このITO微粒子分散液と合わせガラスについて物性を測定して評価を行った。この結果を表2に示した（試料No2～No9）。

【実施例3】

【0097】

中間膜用可塑剤として表1に示す化合物を用い、各成分を表1に示す使用量とした他は実施例1と同様にして、ITO微粒子分散液を製造した。この分散液の成分を表1に示した。この分散液を用い、表2に示すITO濃度になるように表1に記載の中間膜用可塑剤で希釈して中間膜を製造し、この中間膜を用いて合わせガラスを製造した。このITO微粒子分散液と合わせガラスについて物性を測定して評価を行った。この結果を表2に示した（試料No10～No12）。

【0098】

〔試験例〕

ITO微粒子、中間膜用可塑剤、分散安定剤、およびアルコール類について表1に示すものを用い、表1の使用量に従ってITO微粒子分散液を製造した。この分散液を用い、表2に示すITO濃度になるように表1に記載の中間膜用可塑剤で希釈して中間膜を製造し、この中間膜を用いて合わせガラスを製造した。このITO微粒子分散液と合わせガラスについて物性を測定して評価を行った。この結果を表2に示した（試料No13～No14）。

【比較例】

【0099】

格子定数がやや大きいITO微粒子を用い、中間膜用可塑剤、分散安定剤、およびアルコール類について表1に示すものを用い、表1の使用量に従ってITO微粒子分散液を製造した。またITO微粒子、中間膜用可塑剤、分散安定剤、およびアルコール類について表1に示すものを用い、表1の使用量に従ってITO微粒子分散液を製造した。この分散液を用いて合わせガラスを製造した。このITO微粒子分散液と合わせガラスについて物性を測定して評価を行った。この結果を表2に示した（試料No15～No18）。

【0100】

分散安定剤およびアルコール類を用いず、中間膜用可塑剤のみを用い、実施例1と同様に10
してITO微粒子分散液を製造した。この分散液の成分を表1に示した。さらに、この分散液を用いて合わせガラスを製造した。このITO微粒子分散液と合わせガラスについて物性を測定して評価を行った。この結果を表2に示した（試料No19）。

【0101】

アルコール類を用いず、分散安定剤として硫酸エステルまたはn-酪酸の1種類を用いた他は実施例1と同様に10
してITO微粒子分散液を製造した。この分散液の成分を表1に示した。この分散液を用いて合わせガラスを製造した。このITO微粒子分散液と合わせガラスについて物性を測定した。この結果を表2に示した（試料No20～No21）。

【0102】

表1の試料No1a、No2、No12の成分からアルコール類を除いた成分を用いた他は実施20
例1と同様に10
してITO分散液を調製し、この分散液を用いて合わせガラスを製造した。このITO微粒子分散液と合わせガラスについて物性を測定した。この結果を表2に示した（試料No22、No.23、No24）。

【0103】

分散安定剤を用いず、可塑剤とアルコール類を用い、実施例1と同様に10
してITO微粒子分散液を製造した。この分散液の成分を表1に示した。さらに、この分散液を用いて合わせガラスを製造した。このITO微粒子分散液と合わせガラスについて物性を測定して評価を行った。この結果を表2に示した（試料No25）。

【0104】

実施例1と同様のITO微粒子と中間膜用可塑剤と共に、表1に示すようにアニオン系30
界面活性剤または高級脂肪酸エステルを用い、実施例1と同様に10
してITO微粒子分散液を製造した。この分散液の成分を表1に示した。さらに、この分散液を用いて合わせガラスを製造した。このITO微粒子分散液と合わせガラスについて物性を測定して評価を行った。この結果を表2に示した（試料No26、No27）。

【0105】

表1および表2に示すように、本発明の実施例（No1～No12）のITO微粒子分散液および合わせガラスは、比較試料（No16～No21、No25～No27）に比較して、可視光透過率(Tv)が高く、またヘイズが低く、反射イエローインデックスの絶対値が小さい。さらに、本発明の実施例（No1～No12）の合わせガラスは、比較試料（No16～No21、No25～No27）に比較して、変角光度測定値、体積平均粒子径、100nm超粒子数が何れも大幅に低い。また、40
パンメル値は何れも4であり好ましい範囲に調整されている。

【0106】

分散安定剤のn-酪酸を含まない試験例No13は、分散安定剤のアセチルアセトンを含まない試験例No14と共に、可視光透過率、日射透過率、ヘイズ、反射イエローインデックス、変角光度の反射測定値、パンメル値は何れも良好である。

【0107】

一方、ITO微粒子の格子定数がやや大きい比較試料No15は可視光透過率に対する日射透過率が本発明の範囲を外れる。また、比較試料（No16～No21、No25～No27）はITO微粒子分散液のヘイズが1.0%よりも高く、反射イエローインデックスが-20よりもかなり低く、変角光度の反射測定値が40以上である。また、合わせガラス用中間膜のヘイズ50

が1.0%よりも高く、反射イエローインデックスが-15~-18の水準であり、変角光度の反射測定値が29~66の水準であり、何れも本発明の範囲を外れている。

【0108】

比較試料No22~No24は、ITO微粒子分散液のヘイズは1.0%よりも高く、反射イエローインデックスが-20よりも低く、変角光度の反射測定値が50以上である。また、合わせガラス用中間膜のヘイズは、No22とNo23は1.0%以下であるが、No24は1.0%よりも高く、反射イエローインデックスが-14~-18の水準であり、変角光度の反射測定値が38~66の水準であり、何れも本発明の範囲を大きく外れている。

【0109】

10

20

30

40

No.	πO微粒子			中間膜用可塑剤		分散安定剤1		分散安定剤2		分散安定剤3		アルコール類	
	一次粒径	格子定数	量	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量
1a	20	10.12	10	3GO	80	リノ酸エステル	1	2-エチルヘキサノ酸	2	アセチルアセト	3	イタール	4
1b	20	10.12	34.5	3GO	31	リノ酸エステル	3.4	2-エチルヘキサノ酸	7	アセチルアセト	10.3	イタール	13.8
1c	20	10.12	25	3GO	50	リノ酸エステル	2.5	2-エチルヘキサノ酸	5	アセチルアセト	7.5	イタール	10
2	25	10.14	30	3GO	55	リノ酸エステル	5	2-エチルヘキサノ酸	2	アセチルアセト	1	イタール	7
3	80	10.15	50	3GO	30	リノ酸エステル	6	n-ヘキサノ酸	3	アセチルアセト	6	イソラウノール	5
4	70	10.14	60	3GO	10	リノ酸エステル	4	n-ヘキサノ酸	8	アセチルアセト	8	シラセトアルコール	10
5	30	10.11	20	3GO	75	硫酸エステル	0.01	n-ヘキサノ酸	0.005	アセチルアセト	0.005	イタール	4.98
6	45	10.14	40	3GO	45	硫酸エステル	2	2-エチルヘキサノ酸	5	アセチルアセト	2	イソラウノール	6
7	60	10.16	10	3GO	85	硫酸エステル	0.5	2-エチルヘキサノ酸	1	アセチルアセト	3	シラセトアルコール	0.5
8	40	10.14	30	3GO	55	ホルニニルアルコール	2	n-ヘキサノ酸	3	アセチルアセト	5	イタール	5
9	50	10.15	50	3GO	24	ホルニニルアルコール	7	n-ヘキサノ酸	4	アセチルアセト	7	シラセトアルコール	8
10	20	10.12	10	3GH	80	リノ酸エステル	1	2-エチルヘキサノ酸	2	アセチルアセト	3	イタール	4
11	20	10.12	10	4GO	80	リノ酸エステル	1	2-エチルヘキサノ酸	2	アセチルアセト	3	イタール	4
12	20	10.12	10	DHA	80	リノ酸エステル	1	2-エチルヘキサノ酸	2	アセチルアセト	3	イタール	4
13	20	10.12	10	3GO	79	硫酸エステル	2	—	—	アセチルアセト	3	イソラウノール	6
14	20	10.12	10	3GO	79	硫酸エステル	2	n-ヘキサノ酸	3	—	—	イソラウノール	6
15	20	10.18	10	3GO	76	硫酸エステル	2	n-ヘキサノ酸	3	アセチルアセト	3	イソラウノール	6
16	210	10.16	10	3GO	76	硫酸エステル	2	n-ヘキサノ酸	3	アセチルアセト	3	イソラウノール	6
17	20	10.12	10	3GO	78	—	—	n-ヘキサノ酸	3	アセチルアセト	3	イソラウノール	6
18	20	10.12	10	3GO	81	—	—	—	—	アセチルアセト	3	イソラウノール	6
19	20	10.12	10	3GO	90	—	—	—	—	—	—	—	—
20	20	10.12	10	3GO	88	硫酸エステル	2	—	—	—	—	—	—
21	20	10.12	10	3GO	87	—	—	n-ヘキサノ酸	3	—	—	—	—
22	20	10.12	10	3GO	84	リノ酸エステル	1	2-エチルヘキサノ酸	2	アセチルアセト	3	—	—
23	25	10.14	30	3GO	62	リノ酸エステル	5	2-エチルヘキサノ酸	2	アセチルアセト	1	—	—
24	20	10.12	10	DHA	84	リノ酸エステル	1	2-エチルヘキサノ酸	2	アセチルアセト	3	—	—
25	20	10.12	10	3GO	84	—	—	—	—	—	—	イソラウノール	6
26	20	10.12	10	3GO	88	高級脂肪酸エステル:2重量%							—
27	20	10.12	10	3GO	88	πO微粒子:30重量部、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル:70重量部、アニオン系界面活性剤:3重量部							—

(注) 一次粒径は一次平均粒子径 (nm)、格子定数はÅ、脂肪酸エステルは「リノ」がリノ脂脂肪酸エステル、量は重量%

【表 1】

【0 1 1 0】

【表 2 - 1】

No.	ITO微粒子分散液						合わせガラス用中間膜									
	0.7重量%液			10重量%液			ITO 濃度	Tv %	Ts %	Δλ %	電磁波 透過性	反射 γI	反射測 定値	体積粒径 nm	100nm超 粒子数	バニメル 値
	Tv %	Ts %	Δλ %	反射 γI	反射測 定値	体積粒径 nm										
1a	91.9	64.5	0.4	-8.1	4.6	43	0.2	87.2	67.6	0.4	3	-4.0	1.1	55	0	4
1b	91.9	64.5	0.4	-8.1	4.7	43	0.7	83.2	56.5	0.6	3	-7.3	3.6	70	0	4
1c	91.9	64.5	0.4	-8.1	5.0	43	0.2	87.2	67.6	0.4	3	-3.9	1.2	50	0	4
2	91.7	64.5	0.5	-8.7	4.7	44	0.7	83.2	56.9	0.6	3	-7.5	3.7	70	0	4
3	89.2	60.3	0.8	-18.3	9.3	75	0.2	86.6	62.2	0.8	3	-7.9	2.1	78	1	4
4	91.8	66.6	0.6	-11	5.3	42	0.7	83.5	58	0.7	3	-7.5	3.8	70	1	4
5	91.5	64.1	0.5	-7.5	5.3	39	0.7	83.5	56.5	0.6	3	-5.7	3.6	58	0	4
6	91.7	66.6	0.5	-11.3	4.8	38	0.2	87.4	67.5	0.4	3	-4.9	1.3	55	0	4
7	91.6	66.4	0.6	-11.3	5.3	50	0.7	83.2	57.6	0.6	3	-7.4	4.2	65	0	4
8	91.0	64.3	0.5	-9.8	4.9	42	0.2	87.0	65.9	0.5	3	-6.0	1.3	65	0	4
9	90.2	65.6	0.6	-15.3	4.7	60	0.7	83.5	58	0.8	3	-7.5	3.6	70	1	4
10	91.8	64.5	0.4	-8.5	4.8	45	0.2	87.3	66.6	0.4	3	-4.1	1.2	50	0	4
11	91.9	64.5	0.4	-8.1	5.1	44	0.2	87.3	66.6	0.4	3	-3.9	1.2	50	0	4
12	91.5	64.0	0.5	-8.9	4.8	48	0.2	87.0	65.7	0.5	3	-4.5	1.3	55	0	4
13	91.8	65.5	0.5	-11.5	4.9	50	0.2	87.1	66.2	0.5	3	-5.5	1.3	60	0	6
14	91.9	66.1	0.5	-11.9	5.2	52	0.2	87.0	68.1	0.5	3	-5.6	1.3	60	0	6

(注) 反射γIは反射イエローインデックス、反射測定値は変角光度測定による測定値、体積粒径は体積平均粒子径、電磁波透過性は(ΔdB)、100nm超粒子数は(個/μm²)

【表 2 - 2】

No.	ITO微粒子分散液					合わせガラス用中間膜									
	0.7重量%液			10重量%液		ITO濃度	Tv %	Ts %	ヘイズ %	電磁波透過性	反射 YI	反射測定値	体積粒径 nm	100nm超粒子数	バビメル値
	Tv %	Ts %	ヘイズ %	反射 YI	反射測定値										
15	91.9	69.2	0.4	-7.9	4.9	0.2	87.3	70.5	0.4	3	-3.8	1.3	48	0	4
16	80.1	49.8	1.5	-30.8	68.9	0.2	76.0	48.8	1.5	3	-17.2	53.6	210	7	4
17	82.0	54.0	2.1	-26.0	40.5	0.2	78.5	53.0	1.4	3	-17.1	39.6	105	3	3
18	81.6	53.7	2.1	-26.0	72.4	0.2	78.1	52.5	1.4	3	-17.0	62.5	105	3	3
19	80.2	50.6	3.2	-32.6	82.2	0.2	76.4	49.5	1.7	3	-18.1	65.6	125	4	3
20	89.0	60.5	1.2	-24.0	53.4	0.2	86.2	62.2	1.2	3	-15.8	39.5	90	2	8
21	81.1	52.8	2.8	-30.5	73.5	0.2	77.0	51.2	1.5	3	-17.6	59.6	120	4	3
22	91.2	63.8	1.2	-22.5	50.2	0.2	86.4	67.0	0.7	3	-14.5	38.0	90	2	4
23	90.9	63.5	1.3	-23.0	52.5	0.2	87.1	67.2	0.8	3	-15.1	39.0	90	2	4
24	82.3	53.5	2.5	-30.0	72.8	0.2	78.2	52.2	1.8	3	-18.5	66.2	130	4	4
25	81.8	53.8	2.2	-26.5	49.4	0.2	78.2	52.7	1.4	3	-17.1	50.0	110	3	3
26	84.3	57.8	1.2	-23.5	39.7	0.2	80.5	51.8	1.2	3	-15.4	29.5	90	2	8
27	84.0	57.4	1.2	-23.8	42.6	0.2	80.0	51.2	1.2	3	-15.6	31.1	90	2	8

(注) 反射 YI は反射イエローインデックス、反射測定値は変角光度測定による測定値、体積粒径は体積平均粒子径、電磁波透過性は(ΔdB)、100nm 超粒子数は(個/μm²)

【表 3】

中間膜露出度(%)	100	90	85	60	40	20	10	5	2 以下
パンメル値	0	1	2	3	4	5	6	7	8

フロントページの続き

(72)発明者 中川 猛

茨城県鹿島郡神栖町東深芝 1 9 番 1 号 株式会社ジェムコ鹿島工場内

(72)発明者 深谷 重一

滋賀県甲賀郡水口町泉 1 2 5 9 積水化学工業株式会社内

(72)発明者 吉岡 忠彦

滋賀県甲賀郡水口町泉 1 2 5 9 積水化学工業株式会社内

(72)発明者 八田 文吾

大阪府三島郡島本町百山 2 - 1 積水化学工業株式会社内

Fターム(参考) 4G061 AA21 BA02 CB03 CB16 CB19 CD02 CD18 DA23

4J002 BE061 DE096 FB076 GT00

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2005-187226

(43)Date of publication of application : 14.07.2005

(51)Int.Cl. C03C 27/12
C08K 3/10
C08K 3/24
C08L 29/14

(21)Application number : 2003-427446

(71)Applicant : MITSUBISHI MATERIALS CORP
JIEMUKO:KK
SEKISUI CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 24.12.2003

(72)Inventor : HAGIWARA MASAHIRO
NAKAGAWA TAKESHI
FUKAYA JUICHI
YOSHIOKA TADAHICO
HATTA BUNGO

(54) TIN-DOPED INDIUM OXIDE PARTICULATE DISPERSION AND ITS PRODUCTION METHOD; GLASS LAMINATE INTERLAYER USING THE DISPERSION AND HAVING HEAT RAY SHIELDING PROPERTY; AND GLASS LAMINATE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a tin-doped indium oxide (ITO) particulate dispersion excellent in the dispersibility of an ITO particulate and capable of yielding a highly transparent heat-shielding glass laminate; a glass laminate interlayer containing the ITO particulate; and a glass laminate.

SOLUTION: The tin-doped indium oxide particulate dispersion is characterized by the following: the measured reflection value of the dispersion at 0 degree is 30 or less in the reflection light distribution at an incident angle of 45 degree by reflection measurement with a goniophotometer; the dispersion contains a tin-doped indium oxide particulate, a plasticizer for an interlayer, an organic solvent mainly comprising an alcohol, and a dispersion stabilizer; and under measuring conditions with a tin-doped indium oxide particulate concentration of 0.7 wt.% and an optical path length of a glass cell of 1 mm, the visible light transmittance is 80% or higher, the insolation transmittance in a wavelength range of 300-2,100 nm is 3/4 or lower of the visible light transmittance, the haze value is 1.0% or lower, and the reflection yellow index is -20 or higher. The glass laminate interlayer uses the tin-doped indium oxide particulate dispersion. The glass laminate uses the glass laminate interlayer.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

* NOTICES *

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]

A tin dope indium oxide particle, the plasticizer for interlayers, the organic solvent that uses alcohols as a principal component, and contain a distributed stabilizer and it sets under 0.7 % of the weight of tin dope indium oxide particle concentration, and the Measuring condition of 1mm of optical path lengths of a glass cell. Tin dope indium oxide particle dispersion liquid characterized by for the solar radiation permeability of the wavelength field whose light permeability is 80% or more and 300nm - 2100nm being 3/4 or less [of light permeability], for Hayes being 1.0% or less, and a reflective yellow index being -20 or more.

[Claim 2]

Tin dope indium oxide particle dispersion liquid characterized by the reflective measured value of 0 times being 30 or less among the reflected light distribution in 45 incident angles by the reflective measurement by the deflection photometer in the bottom of the Measuring condition of 1mm of optical path lengths of a glass cell while it replaces with a reflective yellow index being -20 or more or a reflective yellow index is -20 or more in the tin dope indium oxide particle dispersion liquid of claim 1.

[Claim 3]

Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any of claim 1 which is at least one sort chosen from the group which the plasticizer for interlayers becomes from a dihexyl horse mackerel peat, triethylene glycol-G 2-ethylhexanoate, tetraethylene glycol-G 2-ethylhexanoate, triethylene glycol di-2-ethyl butyrate, tetraethylene glycol-G 2-ethyl butyrate, tetraethylene glycol-G heptanoate, and triethylene glycol-G heptanoate, or claim 2].

[Claim 4]

Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 which is at least one sort chosen from the group which alcohols become from a methanol, ethanol, propanol, isopropanol, n-butanol, isobutanol, a sec-butanol, a tert-butanol, lauryl alcohol, diacetone alcohol, a cyclohexanol, ethylene glycol, a diethylene glycol, and triethylene glycol to claim 3].

[Claim 5]

Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 which is the compound which has at least one sort of atoms chosen from the group which a distributed stabilizer becomes from nitrogen, Lyrn, and a chalcogen system atom group to claim 4].

[Claim 6]

Tin dope indium oxide particle dispersion liquid whose distributed stabilizer of claim 5 is at least one sort chosen from the group which it becomes from a sulfate system compound, a phosphoric ester system compound, a ricinoleic acid, the Pori ricinoleic acid, polycarboxylic acid, a polyhydric-alcohol mold surface active agent, polyvinyl alcohol, and a polyvinyl butyral.

[Claim 7]

Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 which is at least one sort chosen from the group which a distributed stabilizer becomes from a

chelate, an inorganic acid, and an organic acid to claim 6].

[Claim 8]

Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 which contains three components of a phosphoric ester system compound, an organic acid, and a chelate as a distributed stabilizer to claim 7].

[Claim 9]

0.1 - 95 % of the weight of concentration of a tin dope indium oxide particle, 1 - 99.9 % of the weight of contents of the plasticizer for interlayers, 0.02 - 25 % of the weight of contents of the organic solvent which uses alcohols as a principal component, tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 which is 0.0025 - 30 % of the weight of distributed stabilizers to claim 8].

[Claim 10]

Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 which it comes to dilute with the plasticizer for interlayers which contains a tin dope indium oxide particle, the plasticizer for interlayers, the organic solvent that uses alcohols as a principal component, and a distributed stabilizer, and contains the organic solvent and/, or the distributed stabilizer which uses as the plasticizer for interlayers that whose concentration of a tin dope indium oxide particle is 0.1 % of the weight - 95 % of the weight, and uses alcohols as a principal component to claim 9].

[Claim 11]

When the concentration of a tin dope indium oxide particle dilutes what is 10.0 % of the weight or more and makes tin dope indium oxide particle concentration 10.0 % of the weight Or when the concentration of a tin dope indium oxide particle dilutes what is 40.0 % of the weight or more and makes tin dope indium oxide particle concentration 40.0 % of the weight Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 whose 90% particle size (D90) of accumulation the volume mean particle diameter of a tin dope indium oxide particle is 80nm or less, and is 160nm or less to claim 10].

[Claim 12]

Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 whose primary mean particle diameter of a tin dope indium oxide particle is 0.2 micrometers or less to claim 11].

[Claim 13]

Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 whose lattice constant of a tin dope indium oxide particle crystal is 10.11-10.16A to claim 12].

[Claim 14]

The manufacture approach of the tin dope indium oxide particle dispersion liquid characterized by being the approach of manufacturing the tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 to claim 13], mixing the organic solvent which uses alcohols as a principal component, a distributed stabilizer, a tin dope indium oxide particle, and the plasticizer for interlayers, and distributing a tin dope indium oxide particle.

[Claim 15]

The manufacture approach indicated to claim 14 which prepares the organic solvent which uses alcohols as a principal component, a distributed stabilizer, and the mixed liquor containing a tin dope indium oxide particle, mixes this mixed liquor and the plasticizer for interlayers, and is made into tin dope indium oxide particle dispersion liquid.

[Claim 16]

The manufacture approach indicated to claim 15 which the organic solvent which uses alcohols as a principal component, a distributed stabilizer, and the mixed liquor containing a tin dope indium oxide particle are prepared [claim], and this mixed liquor is added [claim] to the plasticizer for interlayers, or the plasticizer for interlayers is added [claim] to this mixed liquor, and distributes a tin dope indium oxide particle.

[Claim 17]

The manufacture approach indicated they to be [any of claim 15 using what contains the

.../tran_web.cgi_ejje?u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.ncipi.go.jp%2FTokujitu%2Ftjitemcnt.ipd2006/05/19

.../tran_web.cgi_ejje?u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.ncipi.go.jp%2FTokujitu%2Ftjitemcnt.ip 2006/05/19

organic solvent or distributed stabilizer which uses alcohols as a principal component as a plasticizer for interlayers, or claim 16].

[Claim 18]

It is the interlayer for heat ray electric shielding glass laminates formed with the resin constituent which comes to mix the tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from claim 1 to claim 13], and resin. In the bottom of the Measuring condition which put the interlayer of 0.76mm of this thickness between clear glass with a thickness of 2.5mm The electromagnetic wave shielding ability in the frequency of 0.1MHz - 26.5GHz 10dB or less. The interlayer for glass laminates characterized by for the solar radiation permeability in the wavelength field whose Hayes is 1.0% or less, and whose light permeability is 70% or more and 300-2100nm being 80% or less of light permeability, and a reflective yellow index being -12 or more.

[Claim 19]

The interlayer for glass laminates characterized by the reflective measured value of zero being 25 or less among the reflected light distribution in 45 incident angles by the reflective measurement by the deflection photometer while it replaces with a reflective yellow index being -12 or more or a reflective yellow index is -12 or more in the interlayer for glass laminates of claim 18.

[Claim 20]

The interlayer for glass laminates indicated to the polyvinyl-acetal resin 100 weight section they to be [any of claim 18 containing the plasticizer 20 for interlayers - 60 weight sections, and the tin dope indium oxide particle 0.1 - 3 weight sections, or claim 19].

[Claim 21]

The interlayer for glass laminates of claim 20 whose polyvinyl-acetal resin is polyvinyl butyral resin

[Claim 22]

The interlayer for glass laminates which the resin constituent which comes to mix tin dope indium oxide particle dispersion liquid and resin indicates as an adhesive strength regulator further they to be [any from claim 18 containing an alkali-metal salt and/or an alkaline earth-metal salt to claim 21].

[Claim 23]

A tin dope indium oxide particle is an interlayer for glass laminates indicated they to be [any from claim 18 currently distributed that mean particle diameter is 80nm or less, and the rate of a particle's with a particle size of 100nm or more is two or less / per piece/micrometer / to claim 22].

[Claim 24]

The glass laminate characterized by coming to use the interlayer for glass laminates indicated they to be [any from claim 18 to claim 23].

[Claim 25]

The glass laminate with which electromagnetic wave shielding ability [in / it is the glass laminate indicated to claim 24, and / the frequency of 0.1MHz - 26.5GHz] is characterized by 10dB or less or Hayes having the heat ray electric shielding nature whose reflective yellow index the solar radiation permeability in the wavelength field 1.0% or less and whose light permeability are 70% or more and 300-2100nm is 80% or less of light permeability, and is -12 or more.

[Claim 26]

The glass laminate characterized by the reflective measured value of 0 times being 25 or less among the reflected light distribution in 45 incident angles by the reflective measurement by the deflection photometer while it replaces with a reflective yellow index being -12 or more or a reflective yellow index is -12 or more in the glass laminate of claim 25.

[Translation done.]

.../tran_web.cgi_ejje?u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.ncipi.go.jp%2FTokujitu%2Ftjitemcnt.ip 2006/05/19

BEST AVAILABLE COPY

.../tran_web.cgi_ejje?u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.ncipi.go.jp%2FTokujitu%2Ftjitemcnt.ip 2006/05/19

• NOTICES •

JPO and NCIPJ are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. *** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[Field of the Invention]

[0001]

This invention relates to the manufacture approach of the tin dope indium oxide particle dispersion liquid which can be used for manufacture of the interlayer for glass laminates, and its dispersion liquid and the interlayer for glass laminates which has heat ray electric shielding nature, and its glass laminate.

[Background of the Invention]

[0002]

Generally, the glass laminate has the structure which the interlayer for glass laminates (only henceforth an interlayer) which consists of polyvinyl-acetal resin, such as polyvinyl butyral resin plasticized with the plasticizer, was made to intervene, and was made to unify between the glass of a pair at least. The glass laminate of such structure has that the fragment of glass disperses [little], even if it damages in response to an external impact, and since it is safe, it is widely used as windowpanes, such as cars, such as an automobile, an aircraft, and a building, etc.

[0003]

However, conventionally, although the glass laminate using such an interlayer was excellent in safety, it had the trouble of being inferior to thermal insulation nature. Generally, although the amount of energy is as small as about 10% as compared with ultraviolet rays, once a thermal operation is large and is absorbed by the matter, since the infrared radiation 780nm or more with wavelength longer than the light is emitted as heat and brings about a temperature rise, it is called the heat ray. The glass laminate which can cover this heat ray effectively is called for. For example, if it enables it to intercept the big infrared radiation of a thermal operation among the beams of light which carry out incidence from the windshield and side glass of an automobile, thermal insulation nature increases and the temperature rise of the automatic section in the car can be suppressed. As an inclination in recent years, the glass opening aspect product in an automobile etc. is increasing, thermal insulation nature of a glass laminate is made high, and the need of giving a heat ray cut function to glass opening is increasing.

[0004]

As a glass laminate which raised thermal insulation nature, the plasticizer which distributed the tin dope indium oxide particle (henceforth an ITO particle) is added to transparency resin, and the glass laminate using the interlayer which consists of this transparency resin is known (patent reference 1). As this interlayer for glass laminates, the particle size of an ITO particle is limited to 0.1 micrometers or less so that transparency may not be spoiled, the ITO particle dispersion liquid which made the di-2-ethylhexyl phthalate of a plasticizer mix and distribute this ITO particle with an anion system surface active agent are prepared, and what scoured these dispersion liquid to polyvinyl butyral resin, and film-ized them to it is indicated.

[0005]

Moreover, what mixed an ITO particle, higher-fatty-acid ester, and the dispersion liquid containing a plasticizer to resin as an interlayer constituent for glass laminates which has thermal insulation nature is known (patent reference 2). In this interlayer constituent, in order

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

condition of 1mm of optical path lengths of a glass cell. Tin dope indium oxide particle dispersion liquid characterized by for the solar radiation permeability of the wavelength field whose light permeability is 80% or more and 300nm - 2100nm being 3/4 or less [of light permeability], for Hayes being 1.0% or less, and a reflective yellow index being -20 or more.

(2) Tin dope indium oxide particle dispersion liquid characterized by the reflective measured value of 0 times being 30 or less among the reflected light distribution in 45 incident angles by the reflective measurement by the deflection photometer in the bottom of the Measuring condition of 1mm of optical path lengths of a glass cell while it replaces with a reflective yellow index being -20 or more or a reflective yellow index is -20 or more in the tin dope indium oxide particle dispersion liquid of the above (1).

(3) Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any of the above (1) which is at least one sort chosen from the group which the plasticizer for interlayers becomes from a dixethyl horse mackerel peat, triethylene glycol-G 2-ethylhexanoate, tetraethylene glycol-G 2-ethylhexanoate, triethylene glycol di-2-ethyl butyrate, tetraethylene glycol-G 2-ethyl butyrate, tetraethylene glycol-G heptanoate, and triethylene glycol-G heptanoate, or the above (2)].

(4) Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1) which is at least one sort chosen from the group which alcohols become from a methanol, ethanol, propanol, isopropanol, n-butanol, isobutanol, a sec-butanol, a tert-butanol, lauryl alcohol, diacetone alcohol, a cyclohexanol, ethylene glycol, a diethylene glycol, and triethylene glycol to the above (3)].

(5) Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1) which is the compound which has at least one sort of atoms chosen from the group which a distributed stabilizer becomes from nitrogen, Lynn, and a chalcogen system atom group to the above (4)].

(6) Tin dope indium oxide particle dispersion liquid whose distributed stabilizer of the above (5) is at least one sort chosen from the group which it becomes from a sulfate system compound, a phosphoric ester system compound, a ricinoleic acid, the Pori ricinoleic acid, polycarboxylic acid, a polyhydric-alcohol mold surface active agent, polyvinyl alcohol, and a polyvinyl butyral.

(7) Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1) which is at least one sort chosen from the group which a distributed stabilizer becomes from a chelate, an inorganic acid, and an organic acid to the above (6)].

(8) Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1) which contains three components of a phosphoric ester system compound, an organic acid, and a chelate as a distributed stabilizer to the above (7)].

(9) 0.1 - 95 % of the weight of concentration of an ITO particle, 1 - 99.9 % of the weight of contents of the plasticizer for interlayers, 0.02 - 25 % of the weight of contents of the organic solvent which uses alcohols as a principal component, tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1) which is 0.0025 - 30 % of the weight of distributed stabilizers to the above (8)].

[0011]

(10) Tin dope indium-oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1) which it comes to dilute with the plasticizer for interlayers which contains a tin dope indium-oxide particle, the plasticizer for interlayers, the organic solvent that uses alcohols as a principal component, and a distributed stabilizer, and contains the organic solvent and/, or the distributed stabilizer which uses as the plasticizer for interlayers that whose concentration of a tin dope indium oxide particle is 0.1 % of the weight - 95 % of the weight, and uses alcohols as a principal component to the above (9)].

(11) When the concentration of a tin dope indium oxide particle dilutes what is 10.0 % of the weight or more and makes tin dope indium oxide particle concentration 10.0 % of the weight Or when the concentration of a tin dope indium oxide particle dilutes what is 40.0 % of the weight or more and makes tin dope indium oxide particle concentration 40.0 % of the weight Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1)

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

to raise the dispersibility of an ITO particle, higher-fatty-acid ester, such as polyglyceryl fatty acid ester, is added to dispersion liquid.

[0006]

However, even when the conventional interlayer constituent for glass laminates or the ITO particle dispersion liquid used for this interlayer constituent has the same haze which is the index of transparency, if they gives an include angle, they will become cloudy, and has that transparency is bad. Moreover, when distributing an ITO particle to a plasticizer and the common dispersant was used, there was a problem which says that adjustment of the adhesive strength of the glass of a glass laminate and the interface of an interlayer is difficult. Moreover, controlling fluctuation of the adhesive strength between the glass by water content change of an interlayer and an interlayer also has the problem of becoming difficult. Furthermore, when ITO particle dispersion liquid were diluted with the plasticizer for interlayers, the phenomenon of the so-called solvent shock which distribution of an ITO particle collapses and becomes floc was caused, and there were problems, such as becoming the cause of reducing transparency.

[0007]

what, on the other hand, added the triethylene glycol-G 2-hexanoate (3GO) of a plasticizer in the liquid which made phyphosphate and an acetylacetone distribute an ITO particle (patent reference 3), and this — further — what added 2-ethylhexanoic acid (patent reference 4) is known. However, since alcohols are not contained, hydrophobicity is high, for this reason, an ITO particle cannot get used to liquid easily, and each of these constituents has faults, such as a lifting and a cone, in a solvent shock. Moreover, there is also a fault that fluctuation of the property of the dispersion liquid by the class of interlayer plasticizer is large.

[Patent reference 1] JP.3040681.B

[Patent reference 2] JP.2001-233843.A

[Patent reference 3] JP.2002-293583.A

[Patent reference 4] JP.2001-302289.A

[Description of the Invention]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]

[0008]

While this invention solves the conventional above-mentioned problem about the interlayer using the ITO particle dispersion liquid which have heat ray electric shielding nature thru/ or these dispersion liquid etc. and making a haze below into constant value The reflective yellow index (YI) which makes an index reflective measured value in deflection photometry, or has the above-mentioned reflective measured value and correlation is made into an index. By controlling these values in the fixed range, ITO particle dispersion liquid excellent in transparency and heat cutoff nature are offered, and the interlayer which mixed the above-mentioned ITO particle dispersion liquid, and the heat ray electric shielding nature glass laminate using this interlayer are offered.

[0009]

Furthermore, this invention makes adjustment of adhesive strength easy with the combination of a distributed stabilizer, is excellent in the dispersibility of an ITO particle, and has the advantage of being easy to control fluctuation of the bond strength of the glass by water content change of an interlayer, and an interlayer interface, and offers the interlayer which mixed the ITO particle dispersion liquid which cannot produce a solvent shock further easily, and these ITO particle dispersion liquid, and the heat ray electric shielding nature glass laminate using this interlayer.

[Means for Solving the Problem]

[0010]

This invention relates to the following tin dope indium oxide particle dispersion liquid and its manufacture approach.

(1) A tin dope indium oxide particle, the plasticizer for interlayers, the organic solvent that uses alcohols as a principal component. And contain a distributed stabilizer and it sets under 0.7 % of the weight of tin dope indium oxide particle concentration, and the Measuring

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

whose 90% particle size (D90) of accumulation the volume mean particle diameter of a tin dope indium oxide particle is 80nm or less, and is 150nm or less to the above (10)].

(12) Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1) whose primary mean particle diameter of a tin dope indium oxide particle is 0.2 micrometers or less to the above (11)].

(13) Tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1) whose lattice constant of a tin dope indium oxide particle crystal is 10.11-10.18Å to the above (12)].

[0012]

(14) The manufacture approach of the tin dope indium oxide particle dispersion liquid characterized by being the approach of manufacturing the tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1) to the above (13)], mixing the organic solvent which uses alcohols as a principal component, a distributed stabilizer, a tin dope indium oxide particle, and the plasticizer for interlayers, and distributing a tin dope indium oxide particle.

(15) The manufacture approach indicated to the above (14) which prepares the organic solvent which uses alcohols as a principal component, a distributed stabilizer, and the mixed liquor containing a tin dope indium oxide particle, mixes this mixed liquor and the plasticizer for interlayers, and is made into tin dope indium oxide particle dispersion liquid.

(16) the mixed liquor containing the organic solvent which uses alcohols as a principal component, a distributed stabilizer, and a tin dope indium oxide particle — preparing — this mixed liquor — the plasticizer for interlayers — in addition — or this mixed liquor — the plasticizer for interlayers — in addition, the manufacture approach indicated to the above (15) which distributes a tin dope indium oxide particle.

(17) The manufacture approach indicated they to be [any of the above (15) using what contains the organic solvent or distributed stabilizer which uses alcohols as a principal component as a plasticizer for interlayers, or the above (16)].

[0013]

Moreover, this invention relates to the interlayer for glass laminates which has the following heat ray electric shielding nature, and its glass laminate.

(18) It is the interlayer for heat ray electric shielding glass laminates formed with the resin constituent which comes to mix the tin dope indium oxide particle dispersion liquid indicated they to be [any from the above (1) to the above (13)], and resin. In the bottom of the Measuring condition which put the interlayer of 0.78mm of this thickness between clear glass with a thickness of 2.5mm The electromagnetic wave shielding ability in the frequency of 0.1MHz - 26.5GHz 10dB or less. The interlayer for glass laminates characterized by for the solar radiation permeability in the wavelength field whose Hayes is 1.0% or less, and whose light permeability is 70% or more and 300-2100nm being 80% or less of light permeability, and a reflective yellow index being -12 or more.

(19) The interlayer for glass laminates characterized by the reflective measured value of 0 times being 25 or less among the reflected light distribution in 45 incident angles by the reflective measurement by the deflection photometer while it replaces with a reflective yellow index being -12 or more or a reflective yellow index is -12 or more in the interlayer for glass laminates of the above (18)..

(20) The interlayer for glass laminates indicated to the polyvinyl-acetal resin 100 weight section they to be [any of the above (18) containing the plasticizer 20 for interlayers - 60 weight sections, and the tin dope indium oxide particle 0.1 - 3 weight sections, or the above (19)].

(21) The interlayer for heat ray electric shielding glass laminates of the above (20) whose polyvinyl-acetal resin is polyvinyl butyral resin.

(22) The interlayer for glass laminates which the resin constituent which comes to mix tin dope indium oxide particle dispersion liquid and resin indicates as an adhesive strength regulator further they to be [any from the above (18) containing an alkali-metal salt and/or an alkaline-earth-metal salt to the above (21)].

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

(23) A tin dope indium oxide particle is an interlayer for glass laminates indicated they to be [any from the above (18) currently distributed that mean particle diameter is 80nm or less, and the rate of a particle with a particle size of 100nm or more is two or less / per piece/micrometer / to the above (22)].

[0014]

(24) The glass laminate characterized by coming to use the interlayer for glass laminates indicated they to be [any from the above (18) to the above (23)].

(25) The glass laminate with which electromagnetic wave shielding ability [in / it is **** glass indicated above (24), and / the frequency of 0.1MHz - 26.5GHz] is characterized by 10dB or less and Hayes having the heat ray electric shielding nature whose reflective yellow index the solar radiation permeability in the wavelength field 1.0% or less and whose light permeability are 70% or more and 300-2100nm is 80% or less of light permeability, and is -12 or more.

(26) The glass laminate characterized by the reflective measured value of 0 times being 25 or less among the reflected light distribution in 45 incident angles by the reflective measurement by the deflection photometer while it replaces with a reflective yellow index being -12 or more or a reflective yellow index is -12 or more in the glass laminate of the above (25).

[0015]

Hereafter, this invention is explained concretely.

The tin dope indium oxide particle dispersion liquid of this invention A tin dope indium oxide particle, the plasticizer for interlayers, the organic solvent that uses alcohols as a principal component (It also being hereafter called an alcoholic solvent) and the tin dope indium oxide particle dispersion liquid containing a distributed stabilizer Are (also calling it ITO particle dispersion liquid hereafter), and it sets under 0.7 % of the weight of tin dope indium oxide particle concentration, and the Measuring condition of 1mm of optical path lengths of a glass cell. 3/4 or less [of light permeability] and Hayes are characterized by a reflective yellow index being -20 or more by the solar radiation permeability of the wavelength field whose light permeability is 80% or more and 300nm - 2100nm 1.0% or less.

[0016]

Moreover, the ITO particle dispersion liquid of this invention are replaced with the above-mentioned reflective yellow index being -20 or more, or they are characterized by the reflective measured value of 0 times being 30 or less among the reflected light distribution in 45 incident angles by the reflective measurement by the deflection photometer while a reflective yellow index is -20 or more.

[0017]

As for the above-mentioned ITO particle, it is desirable that primary mean particle diameter is 0.2 micrometers or less. When primary mean particle diameter exceeds 0.2 micrometers, Hayes of the interlayer obtained, as a result a glass laminate may get worse, or nebula by dispersion of the visible ray by the ITO particle may arise. It is 0.1 micrometers or less more preferably, and is 0.08 micrometers or less still more preferably. Moreover, as for the above-mentioned ITO particle, what is within the limits whose lattice constant of the crystal is 10.11Å - 10.16Å is desirable. When out of range, this thing [that sufficient heat ray cut effectiveness is not acquired] exists.

[0018]

The method of manufacturing the above-mentioned ITO particle is not limited. For example, the method of manufacturing an ITO particle etc. is mentioned by carrying out heating baking in the nitrogen from which alkali was made for the water solution containing the aqueous salt of indium chloride and a small amount of chlorination tin to react, coprecipitation of the hydroxide of an indium and tin was carried out, and oxygen was removed by using this coprecipitate as a raw material, and making it change into an oxide.

[0019]

In the ITO particle dispersion liquid of this invention, the above-mentioned plasticizer for interlayers has a role of a dispersion medium which distributes an ITO particle. Especially if it is usually used to polyvinyl-acetal resin etc. as this plasticizer for interlayers, it will not be limited, but phosphoric-acid system plasticizers, such as organic ester system plasticizers,

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

JP,2005-187226.A [DETAILED DESCRIPTION]

7/24 ページ

reflective measured value in deflection photometry to 25 or less preferably or less by 30. In addition, the reflective measured value of this deflection photometry is a value which made the reference the plasticizer filled to the glass cell of 1mm of optical path lengths on the basis of 0 times among the reflected light distribution in 45 incident angles about ITO particle dispersion liquid, and deducted that reference. Furthermore, the reflective yellow index which has the above-mentioned reflective measured value and correlation can be raised to -20 or more. Moreover, it is effective in preventing a solvent shock. Furthermore, there is effectiveness which controls fluctuation of the dispersion-liquid property by the class of interlayer plasticizer.

[0026]

The compound which has at least one sort of atoms chosen from nitrogen, Lynn, and the group that consists of a chalcogen system atom group as the above-mentioned distributed stabilizer, for example is desirable. These atoms tend to get used to an ITO particle, and can acquire a good dispersion effect. As such a compound, amphoteric surface active agents, such as cationic surfactants, such as nonionic surface active agents, such as anionic surfactants, such as (I) carboxylate, a sulfonate, a sulfate salt, phosphate, a polymerization mold macromolecule, and a polycondensation mold macromolecule, (II) ether, ester, the ester ether, and *****, a primary-amine (III) salt or a tertiary-amine salt, quaternary ammonium salt, and a polyethylene polyamine derivative, (IV) carboxy betaine, aminocarboxylate, sulfobetaine, an amino sulfate, and imidazoline, etc. are mentioned, for example. Especially at least one sort chosen from the group which consists of a sulfate system compound, a phosphoric ester system compound, a ricinoleic acid, the Pori ricinoleic acid, polycarboxylic acid, a polyhydric-alcohol mold surface active agent, polyvinyl alcohol, and a polyvinyl butyral especially is suitable.

[0027]

As the above-mentioned phosphoric ester system compound, polyoxyethylene-alkyl-ether phosphoric ester, alkyl ether phosphoric ester, polyoxyethylene-alkyl-phenyl-ether phosphoric ester, etc. are mentioned, for example.

[0028]

At least one sort chosen from the group which consists of a chelate, an inorganic acid, and an organic acid as the above-mentioned distributed stabilizer is also suitable. The above-mentioned chelate is not limited, for example, can use ethylenediaminetetraacetic acid (EDTA) and beta diketones. Inside, since it excels in compatibility with the above-mentioned plasticizer for interlayers, or resin, beta diketones are desirable, and especially an acetylacetone is suitable also in it. If it carries out to the above-mentioned beta diketones, for example, a benzoyl trifluoro acetone, dipivaloyl methane, etc. may be used. These chelates can raise the reflective yellow index which prevents condensation of an ITO particle, and reduces the reflective measured value in deflection photometry, and has the above-mentioned reflective measured value and correlation.

[0029]

The above-mentioned inorganic acid is not limited. For example, a hydrochloric acid, a nitric acid, etc. can be used. Moreover, the above-mentioned organic acid is not limited, either. For example, aliphatic carboxylic acid, aliphatic series dicarboxylic acid, aromatic carboxylic acid, aromatic series dicarboxylic acid, etc. can be used. Specifically, a benzoic acid, a phthalic acid, a salicylic acid, etc. are mentioned. Especially, the aliphatic carboxylic acid of carbon numbers C2-C18 is desirable, and the aliphatic carboxylic acid of carbon numbers C2-C10 is more desirable. As aliphatic carboxylic acid of the above-mentioned carbon numbers C2-C10, an acetic acid, a propionic acid, n-butyric acid, 2-ethyl butyric acid, n-hexanoic acid, 2-ethylhexanoic acid, n-octanoic acid, etc. are mentioned, for example. These inorganic acids and organic acids can raise the reflective yellow index which prevents condensation of an ITO particle, and reduces the reflective measured value in deflection photometry, and has the above-mentioned reflective measured value and correlation.

[0030]

In the ITO dispersion liquid of this invention, in order for an ITO particle to high-distribute and

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

such as monobasic-acid ester and polybasic acid ester, or an organic phosphorus acid system, and an organic phosphorous acid system, etc. can be used that what is necessary is just the well-known plasticizer generally used as a plasticizer for interlayers.

[0020]

As monobasic-acid ester, the ester of the glycol system ester obtained by the reaction with organic acids, such as triethylene glycol, butanoic acid and an isobutyric acid, a caproic acid, 2-ethyl butanoic acid, oenanthic acid, n-octylic acid, a 2-ethylhexyl acid, pelargonic acid (n-nonylic acid), and a DESHIRU acid, or tetraethylene glycol, tripropylene glycol, and the above-mentioned organic acid etc. is mentioned among the above-mentioned organic ester system plasticizers, for example. Moreover, as the above-mentioned polybasic acid ester, the ester of organic acids, such as an adipic acid, sebacic acid, and an azelaic acid, and the shape of a straight chain of carbon numbers 4-8 and the letter alcohol of branching etc. is mentioned, for example.

[0021]

As an example of the above-mentioned organic ester system plasticizer For example, triethylene glycol di-2-ethyl butyrate, TORIECHIRENGURIKORUJI-2-ethylhexoate, Triethylene glycol dicaprylate, TORIECHIRENGURIKORUJI-n-octoate, TORIECHIRENGURIKORUJI-n-HEPUTOETO, tetra-ethylene GURIKORUJI-n-HEPUTOETO, Dibutyl sebacate, dioctylazelaate, a dibutyl carbitol horse mackerel peat, Ethylene GURIKORUJI-2-ethyl butyrate, 1, 3-propylene GURIKORUJI-2-ethyl butyrate, 1, 4-propylene GURIKORUJI-2-ethyl butyrate, 1, 4-butylene GURIKORUJI 2-ethyl butyrate, 1, 2-butylene GURIKORUJI-2-ethylene butyrate, diethylene GURIKORUJI-2-ethyl butyrate, Diethylene GURIKORUJI-2-ethylhexoate, Zyro pyrene GURIKORUJI-2-ethyl butyrate, TORIECHIRENGURIKORUJI-2-ethyl PENTOETO, tetra-ethylene GURIKORUJI-2-ethyl butyrate, diethylene-glycol JIKAPURIETO, etc. are mentioned.

[0022]

As the above-mentioned phosphoric-acid system plasticizer, tributoxymethyl phosphate, isodecyl phenyl phosphate, triisopropyl phosphite, etc. are mentioned, for example.

[0023]

Also in these plasticizers for interlayers, a dihexyl horse mackerel peat (DHA), Triethylene glycol-G 2-ethylhexanoate (3GO), Tetraethylene glycol-G 2-ethylhexanoate (4GO), Triethylene glycol di-2-ethyl butyrate (3GH), tetraethylene glycol-G 2-ethyl butyrate (4GH), At least one sort chosen from the group which consists of tetraethylene glycol-G heptanoate (4G7) and triethylene glycol-G heptanoate (3G7) By making the metal salt of the carboxylic acid of carbon numbers 5 or 6 contain as an adhesive strength regulator, it is suitable from the ability to prevent the fall of the adhesive strength of an interlayer and glass with the passage of time, and reconcile milkiness prevention and fall prevention of adhesive strength with the passage of time. Also in these, triethylene glycol-G 2-ethylhexanoate (3GO), triethylene glycol di-2-ethyl butyrate (3GH), tetraethylene glycol-G 2-ethylhexanoate (4GO), and a dihexyl horse mackerel peat (DHA) are suitable especially from being hard to cause hydrolysis.

[0024]

This invention uses what uses alcohols as a principal component as an organic solvent. These alcohols are not limited. For example, at least one sort chosen from the group which consists of a methanol, ethanol, propanol, isopropanol, n-butanol, isobutanol, a sec-butanol, a tert-butanol, lauryl alcohol, diacetone alcohol, a cyclohexanol, ethylene glycol, a diethylene glycol, and triethylene glycol is suitable. Moreover, as a component contained when the organic solvent (ie. alcoholic solvent) which uses the above-mentioned alcohols as a principal component carries out little content of the components other than alcohols, a methyl ethyl ketone, isopropyl acetate, ethyl lactate, 2-pyrrolidone, an ethyl acetoacetate, etc. can be used, for example.

[0025]

The organic solvent which uses alcohols as a principal component tends to get used to an ITO particle, and since compatibility with an interlayer plasticizer is good, it can reduce the

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

JP,2005-187226.A [DETAILED DESCRIPTION]

8/24 ページ

to demonstrate the early optical engine performance, the combination of the plasticizer for interlayers and distributed stabilizer used as a dispersion medium is very important. For example, in using triethylene glycol-G 2-ethylhexanoate (3GO) as the above-mentioned plasticizer for interlayers If it uses combining three components of chelates, such as organic acids, such as the above-mentioned phosphoric ester system compound and 2-ethylhexanoic acid, and an acetylacetone, as a distributed stabilizer, using alcohols as a solvent The reflective yellow index which can be made to distribute an ITO particle with high-concentration and high dispersibility, and reduces the reflective measured value by deflection photometry, and has the above-mentioned reflective measured value and correlation can be raised. The solvent shock at the time of furthermore diluting with the plasticizer for interlayers can be prevented. In addition, as alcohols, a methanol, ethanol, isopropanol, diacetone alcohol, etc. are desirable in this case.

[0031]

In addition, although what added 3GO(s) of a plasticizer in the liquid which made phyphosphate and an acetylacetone distribute an ITO particle, and the thing which added 2-ethylhexanoic acid to the pan are known, since alcohols are not contained, hydrophobicity is high, for this reason, an ITO particle cannot get used easily, and these constituents have faults, such as a lifting and a cone, in a solvent shock. Moreover, fluctuation of the property of the dispersion liquid by the class of interlayer plasticizer is large, and it is hard to control it.

[0032]

Moreover, the dispersed system which uses together three components of chelates, such as organic acids, such as the above-mentioned phosphoric ester system compound and 2-ethylhexanoic acid, and an acetylacetone, has the outstanding effectiveness of making easy control of the adhesive strength of the interlayer obtained by this and a glass interface. Since the penetration-proof of a glass laminate will be reduced if too high [if the bond strength of an interlayer and a glass interface is too low in a glass laminate, exfoliation will be caused in the interface of glass and an interlayer, and], the advantage which can adjust the bond strength of an interlayer and a glass interface easily is large. Moreover, there is also an advantage of being easy to control fluctuation of the bond strength of the glass by water content change of an interlayer and an interlayer interface.

[0033]

In addition, since the above-mentioned distributed stabilizers other than a chelate, an organic acid, and an inorganic acid have the work like a surfactant which strengthens the interaction between an organic interface and an inorganic interface, they will strengthen adhesive strength of the interface of an interlayer and glass. Consequently, it is difficult to control the adhesive strength of glass and an interlayer only by adhesive strength regulators, such as an alkali-metal salt and/or an alkaline-earth-metal salt, moderately, and it difficult to especially control adhesive strength lowness. However, when using the three above-mentioned component together, and these components configure in adhesive strength regulators, such as an alkali-metal salt for controlling the adhesive strength of an interlayer and a glass interface, and/or an alkaline-earth-metal salt, adhesive strength can be controlled under the condition to which what strengthens the adjustment force of an adhesive strength regulator is presumed, consequently the adhesive strength of glass and an interlayer interface becomes strong by the distributed stabilizer as mentioned above.

[0034]

When the ITO particle dispersion liquid of this invention make ITO particle concentration 0.7 % of the weight and it measures using the glass cell of 1mm of optical path lengths, the solar radiation permeability of the wavelength field whose light permeability is 80% or more and 300nm - 2100nm is 3/4 or less [of light permeability], Hayes is 1.0% or less, and a reflective yellow index is -20 or more. Or the reflective measured value by deflection photometry is 30 or less under the above-mentioned Measuring condition.

[0035]

Among these, each reflective measured value by Hayes, the reflective yellow index, and deflection photometry reflects the distributed condition in the ITO particle dispersion liquid of

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

an ITO particle. Moreover, the relation between visible-ray permeability and solar radiation permeability reflects the thermal insulation engine performance of the ITO particle itself. This light permeability and solar radiation permeability can be measured by Japanese Industrial Standards (JIS R 3106). Hayes can be measured by the approach according to Japanese Industrial Standards (JIS K 7105).

[0036]

In the ITO particle dispersion liquid of this invention, when light permeability is less than 80%, the visible-ray permeability of a glass laminate may be inferior in interlayer ***** obtained. Moreover, when the solar radiation permeability of a 300nm ~ 2100nm wavelength field exceeds three fourths of light permeability, interlayer ***** obtained may be inferior in the thermal insulation nature of a glass laminate.

[0037]

Moreover, the reflective yellow index of the ITO particle dispersion liquid of this invention is - 20 or more. This reflective yellow index is computable with the following formula shown in Japanese Industrial Standards (JIS K 7103). Here, X, Y, and Z in a formula express the tristimulus value by reflective measurement of the sample for a trial in the standard light C. Reflective yellow index = $100(1.28X - 1.06Z) / Y$

[0038]

The ITO particle condensed secondarily causes dispersion of light short wavelength, and induces nebula of the dispersed system under the light source. This is because the diameter of a grain which an ITO particle condenses secondarily becomes large and causes dispersion of the short wavelength of the light. Moreover, if there are many flocs, it is proportional to it, and the reflection factor of light short wavelength also becomes high, and also whenever [nebula] increases. Here, it is thought that the reflection factor (Z) of the light short wavelength of the interlayer containing ITO particle dispersion liquid and an ITO particle is proportional to whenever [nebula / of the ITO particle in the dispersed system]. That is, proportionally, if the reflection factor (Z) of light short wavelength and the degree of secondary condensation of an ITO particle have bad dispersibility, they will be considered that the reflection factor (Z) of visible-ray short wavelength becomes large. On the other hand, by the same ITO concentration, absorption of a light medium wave length region and a visible Mitsunaga wavelength region is almost the same, and X and Y are almost the same. Therefore, by the same ITO concentration, since the value of a reflective yellow index becomes small and whenever [nebula] increases so that the reflection factor (Z) of light short wavelength becomes large, the transparency of the interlayer which can grasp the dispersibility of an ITO particle by making this reflective yellow index (YI) into an index, and contains ITO particle dispersion liquid and an ITO particle can be grasped. In addition, when the concentration of an ITO particle differs, since the value of X and Y changes and the level of a reflective yellow index changes, a relative comparison cannot be performed simply.

[0039]

Hayes of ITO particle dispersion liquid exceeds 1.0%, or the distributed condition of an ITO particle is inadequate in a reflective yellow index being less than -20, and Hayes of the interlayer obtained, as a result a glass laminate and a reflective yellow index are inferior. Moreover, if that to which the reflective measured value of deflection luminous intensity exceeds 30 gives an include angle, it will become cloudy, and its transparency is low.

[0040]

If the reflection factor according [the ITO particle dispersion liquid of this invention] to light transmission (Tv), solar radiation transmission (Ts), Hayes, a reflective yellow index, or a deflection photometer is above-mentioned within the limits, the concentration of an ITO particle will not be limited. Moreover, that content is not limited that the plasticizer for interlayers, the organic solvent which uses alcohols as a principal component, and the distributed stabilizer should just be contained in these dispersion liquid.

[0041]

In addition, a minimum is 0.1 % of the weight, and the upper limit of the range where the concentration of an ITO particle is desirable is 95.0 % of the weight. When out of range, it may

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejie

2006/05/19

less.

[0047]

In the manufacture approach of the ITO particle dispersion liquid of this invention, the equipment used for mixing and distribution is not limited. For example, an extruder, plastrograph, a ball mill, a bead mill, a Sand grinder, a kneader, a Banbury mixer, a calendering roll, etc. can be used.

[0048]

The interlayer for glass laminates which has heat ray electric shielding nature can be manufactured by using the resin constituent which mixed the ITO particle dispersion liquid and resin of this invention. From an ITO particle high-distributing, this glass laminate can have the outstanding optical property and thermal insulation nature.

[0049]

As for an ITO particle, in the above-mentioned interlayer, it is desirable to distribute so that mean particle diameter may be 80nm or less. When mean particle diameter exceeds 80nm, dispersion of the visible ray by the ITO particle becomes remarkable, and the transparency of the interlayer obtained may be spoiled. Consequently, advanced transparency which Hayes gets worse when it considers as a glass laminate, for example, is required by the windshield of an automobile etc. is no longer acquired.

[0050]

Furthermore, as for the distributed condition of an ITO particle, in the above-mentioned interlayer, it is desirable to distribute that the rate of a particle with a particle diameter of 100nm or more is two or less [per piece/micrometer]. That is, except one piece, when the interlayer for heat ray electric shielding glass laminates is photoed and observed with a transmission electron microscope, and an ITO particle with a particle diameter of 100 micrometers or more is not observed or it is observed, 1 micrometer of ITO particles with a particle diameter of 100 micrometers or more is distributing within the limit of 2 so that it may be in the condition of otherwise not being observed. When a glass laminate is manufactured using the interlayer of such a distributed condition, it excels in transparency in low Hayes, and high thermal insulation nature is obtained over the whole. In addition, observation by the transmission electron microscope can be performed by taking a photograph with the acceleration voltage of 100kV using transmission electron microscopes [H] by Hitachi, Ltd.]-7100FA mold etc.).

[0051]

The resin which mixes the ITO particle dispersion liquid of this invention is not limited. For example, what is necessary is just well-known resin generally used as transparency resin of the interlayer for glass laminates. Specifically, acrylic copolymerization resin, vinyl chloride-ethylene-glycidyl methacrylate copolymerization resin, etc. which make a configuration unit polyvinyl-acetal resin, polyurethane resin, ethylene-vinyl acetate resin, an acrylic acid, methacrylic acids, or these derivatives are mentioned. Polyvinyl-acetal resin is suitable especially. These resin can be manufactured easily well-known by the approach according to it.

[0052]

Although it is not limited especially if it is polyvinyl-acetal resin which acetalizes polyvinyl alcohol by the aldehyde and is obtained as the above-mentioned polyvinyl-acetal resin, especially a polyvinyl butyral is suitable. The above-mentioned polyvinyl alcohol is obtained by usually saponifying polyvinyl acetate, and, generally saponification degree % of the polyvinyl alcohol of 80-99.8 mols is used.

[0053]

The molecular weight and molecular weight distribution of the above-mentioned polyvinyl-acetal resin are not limited. The minimum with the desirable polymerization degree of the polyvinyl alcohol resin which serves as a raw material from a moldability, physical properties, etc. is 200, and a desirable upper limit is 3000. If the penetration-proof of the glass laminate which will be obtained if this polymerization degree is less than 200 may fall and 3000 is exceeded, the moldability of the resin film will worsen, moreover, the rigidity of the resin film

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejie

2006/05/19

become [the concentration of the above-mentioned ITO particle] difficult this to distribute ITO to homogeneity. The more desirable minimum of this concentration is 10 % of the weight, and a more desirable upper limit is 60 % of the weight.

[0042]

Moreover, in general, 0.0025 - 30 % of the weight is suitable for a distributed stabilizer, and 10 - 60 % of the weight of concentration of an ITO particle, 10 - 85 % of the weight of contents of the plasticizer for interlayers, 0.5 - 10 % of the weight of contents of the organic solvent which uses alcohols as a principal component, and 0.02 - 20 % of the weight of distributed stabilizers are suitable for the content of the organic solvent with which the content of the plasticizer for interlayers uses alcohols as a principal component one to 99.9% of the weight preferably 0.02 to 25% of the weight.

[0043]

When the ITO particle dispersion liquid whose ITO particle concentration is 10.0 - 95.0 % of the weight are left for a long period of time, or when ITO particle concentration is diluted to 40.0% of the weight using the above-mentioned plasticizer for interlayers, as for the ITO particle dispersion liquid of this invention, it is desirable that the volume mean particle diameter of an ITO particle is 80nm or less, and 90% particle size (D90) of accumulation is 160nm or less. When volume mean particle diameter exceeds 80nm, or D90 exceeded 160nm, it mixes with resin and an interlayer is manufactured, the mean particle diameter of the ITO particle in an interlayer may become large, and transparency etc. may be inferior. Also when ITO particle concentration is diluted to 10.0% of the weight, as for the ITO particle dispersion liquid of this invention, it is more desirable that the volume mean particle diameter of an ITO particle is 80nm or less, and D90 is 160nm or less. In addition, even if it is solidifying partially [these ITO particle dispersion liquid] or on the whole, by strong stirring or a strong shaking, acidity or alkalinity is recovered, volume mean particle diameter is 80nm or less, and 90% particle size (D90) of accumulation should just be set to 160nm or less.

[0044]

Although not limited especially as an approach of manufacturing the ITO particle dispersion liquid of this invention, the method of mixing the organic solvent (ie. alcoholic solvent) which uses the above-mentioned alcohol as a principal component, a distributed stabilizer, an ITO particle, and the plasticizer for interlayers, and distributing an ITO particle is suitable. This invention includes the manufacture approach of such ITO particle dispersion liquid.

[0045]

In the manufacture approach of the ITO particle dispersion liquid of this invention, as a concrete mode which mixes an alcoholic solvent, a distributed stabilizer, an ITO particle, and the plasticizer for interlayers For example, an alcoholic solvent, [others / in the case of mixing these to coincidence] A distributed stabilizer and the mixed liquor containing a tin dope indium oxide particle are prepared beforehand. This plasticizer for interlayers may be made to distribute a tin dope indium oxide particle by adding this mixed liquor to the plasticizer for interlayers by making this plasticizer for interlayers distribute a tin dope indium oxide particle, or adding the plasticizer for interlayers to the above-mentioned mixed liquor. Furthermore, what contains an alcoholic solvent and/or a distributed stabilizer as this plasticizer for interlayers may be used. Moreover, it is made to volatilize until the organic solvent which uses alcohols as a principal component becomes predetermined concentration, and the presentation ratio of dispersion liquid may be adjusted.

[0046]

The ITO particle dispersion liquid of this invention may prepare the mixed liquor which the high-concentration ITO particle distributed such beforehand, and may dilute this mixed liquor even to predetermined concentration with the plasticizer for interlayers containing the plasticizer for interlayers or an alcoholic solvent thru/or a distributed stabilizer. When the ITO particle dispersion liquid of this invention choose suitably the class of the plasticizer for interlayers, an alcoholic solvent, and distributed stabilizer also by such dilution, a solvent shock is not caused, but the volume mean particle diameter of an ITO particle is 80nm or less, and 90% particle size (D90) of accumulation can obtain ITO particle dispersion liquid 160nm or

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejie

2006/05/19

becomes large too much, and workability may worsen. The more desirable minimum of polymerization degree is 500 and a more desirable upper limit is 2000.

[0054]

The aldehyde used for acetalization is not limited, either. Generally, the aldehyde of 1-10 is used for a carbon number. Specifically, n-butyraldehyde, isobutyraldehyde, valeric aldehyde, 2-ethyl butyraldehyde, n-hexyl aldehyde, n-octyl aldehyde, n nonyl aldehyde, n-decyl aldehyde, formaldehyde, an acetaldehyde, a benzaldehyde, etc. are mentioned. n-butyraldehyde, n-hexyl aldehyde, and valeric aldehyde are desirable especially desirable especially, and a carbon number is the butyraldehyde of 4.

[0055]

As the above-mentioned polyvinyl acetal, the polyvinyl butyral acetalized by the butyraldehyde is desirable. Moreover, these acetal resin may be blended in a suitable combination, after taking required physical properties into consideration. Furthermore, the ** polyvinyl-acetal resin which combined the aldehyde at the time of acetalization can also be used suitably. The minimum with the desirable degree of acetalization of the above-mentioned polyvinyl-acetal resin used by this invention is 40%, a desirable upper limit is 85%, a more desirable minimum is 60% and a more desirable upper limit is 75%.

[0056]

When using polyvinyl-acetal resin as resin, as for the above-mentioned resin constituent, it is desirable to contain the plasticizer 20 for interlayers - 60 weight sections, and the ITO particle 0.1 - 3 weight sections to the polyvinyl-acetal resin 100 weight section. When the loadings of the plasticizer for interlayers are under 20 weight sections, penetration-proof may fall, if 60 weight sections are exceeded, the bleed out of a plasticizer will arise, and there is a possibility that the optical strain of the glass laminate with which the transparency and the adhesive property of the interlayer for heat ray electric shielding glass laminates fall, and are acquired may become large. The more desirable minimums of the loadings of the plasticizer for interlayers are 30 weight sections, and more desirable upper limits are 60 weight sections. Moreover, if the loadings of an ITO particle are under the 0.1 weight section, the heat ray cut effectiveness may not fully be acquired, if the 3.0 weight sections are exceeded, light permeability may fall, and Hayes may also become large.

[0057]

As for the above-mentioned resin constituent, it is desirable to contain an adhesive strength regulator further. Although not limited especially as the above-mentioned adhesive strength regulator, an alkali-metal salt and/or an alkaline-earth-metal salt are used suitably. It is not limited especially as the above-mentioned alkali-metal salt and/or an alkaline-earth-metal salt, for example, salts, such as a potassium, sodium, and magnesium, are mentioned. It is not limited especially as an acid which constitutes the above-mentioned salt, for example, inorganic acids, such as an organic acid of carboxylic acids, such as octylic acid, a hexyl acid, butanoic acid, an acetic acid, and formic acid, or a hydrochloric acid, and a nitric acid, are mentioned.

[0058]

Also in the above-mentioned alkali-metal salt and/or an alkaline-earth-metal salt, the alkali-metal salt and alkaline-earth-metal salt of an organic acid of carbon numbers 2-18 are more desirable, and the carboxylic-acid magnesium salt of carbon numbers 2-16 and the carboxylic-acid potassium salt of carbon numbers 2-16 are still more desirable.

[0059]

Although not limited especially as the carboxylic-acid magnesium salt or potassium salt of an organic acid of the above-mentioned carbon numbers 2-18, magnesium acetate, potassium acetate, propionic-acid magnesium, a propionic-acid potassium, 2-ethyl butanoic acid magnesium, 2-ethyl butanoic acid potassium, 2-ethylhexanoic acid magnesium, 2-ethylhexanoic acid potassium, etc. are used suitably, for example. These may be used independently and two or more sorts may be used together.

[0060]

Although the addition of the above-mentioned alkali-metal salt and/or an alkaline earth metal

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejie

2006/05/19

REST AVAILABLE COPY

salt is not limited, when the above-mentioned resin is polyvinyl-acetal resin, the 0.001 weight section and the desirable upper limit of a desirable minimum are the 1.0 weight sections to the polyvinyl-acetal resin 100 weight section, for example. When the adhesive strength of the interlayer periphery for heat ray electric shielding glass laminates may decline under a high humidity ambient atmosphere in case of under the 0.001 weight section and the 1.0 weight sections are exceeded, adhesive strength becomes low too much, and also the transparency of the interlayer for heat ray electric shielding glass laminates may be lost. The more desirable minimum of an addition is the 0.01 weight section, and a more desirable upper limit is the 0.2 weight section.

[0061]

As for the above-mentioned resin constituent, it is desirable that an antioxidant contains further. It is not limited especially as the above-mentioned antioxidant, for example, 2, 6-Di-tert-butyl-P-cresol (BHT) ("Sumi Rider BHT" by Sumitomo Chemical Co., Ltd.), and tetrakis-[methylene-3-(3'-5'-G t-butyl -4'-hydroxyphenyl) propionate] methane [Ciba-Geigy:IRUGA NOx 1010] etc. is mentioned as a thing of a phenol system. These antioxidants may be used independently and may use two or more sorts together. Although the addition of the above-mentioned anti-oxidant is not limited, when the above-mentioned resin consists of polyvinyl-acetal resin, for example, to the polyvinyl-acetal resin 100 weight section, a desirable minimum is the 0.01 weight section and desirable upper limits are the 5.0 weight sections.

[0062]

As for the above-mentioned resin constituent, it is desirable to contain an ultraviolet ray absorbent further. It is not limited especially as the above-mentioned ultraviolet ray absorbent, for example, a benzotriazol system compound, a benzophenone system compound, triazine compound, a benzoate system compound, etc. are mentioned.

[0063]

Especially the above-mentioned benzotriazol system compound is not limited. For example, TinuvinP by 2-(2'-hydroxy-5'-methylphenyl) benzotriazol [Ciba-Geigy], 2-(2'-hydroxy-3', 5'-G t-butylphenyl) benzotriazol [Ciba-Geigy make: Tinuvin320], 2-(2'-hydroxy-3'-t-butyl-5'-methylphenyl)- : by 5-chlorobenzo triazole [Ciba-Geigy — Tinuvin326] — 2-(2'5' [-hydroxy-3',]-G amyl phenyl) benzotriazol [Ciba-Geigy make: Tinuvin328] etc. is mentioned.

[0064]

Especially the above-mentioned benzophenone system compound is not limited, for example, Chimassorbby OKUTABENZON [Ciba-Geigy 81] etc. is mentioned. moreover, it limits especially as the above-mentioned triazine compound — not having — for example, 2-(4, 6-diphenyl-1,3,5-triazine-2-IRU)- a 5-[(hexyl) oxy]-phenol [Ciba-Geigy:Tinuvin1577FF] etc. is mentioned. Furthermore, it is not limited especially as the above-mentioned benzoate system compound, for example, they are 2, 4-G tert-butylphenyl -3, and 5-G tert-butyl. - :Tinuvinby 4-hydroxy benzoate [Ciba-Geigy120] etc. is mentioned.

[0065]

Although the addition of the above-mentioned ultraviolet ray absorbent is not limited, when the above-mentioned resin is polyvinyl-acetal resin, the 0.01 weight section and the upper limit of the minimum with a desirable addition are the 5.0 weight sections to the polyvinyl-acetal resin 100 weight section, for example. The effectiveness of ultraviolet absorption is hardly acquired as it is under the 0.01 weight section. When the 5.0 weight sections are exceeded, weathering degradation of resin may be caused. A more desirable minimum is the 0.05 weight section and an upper limit is the 1.0 weight section.

[0066]

The interlayer for glass laminates which consists of the above-mentioned resin constituent may contain additives, such as light stabilizer, a surfactant, a flame retarder, an antistatic agent, *****, a coloring agent, a heat ray reflective agent, and a heat ray absorbent, if needed further. In addition, although the whole quantity originates in the ITO particle dispersion liquid of this invention, the distributed stabilizer contained in the above-mentioned resin constituent may be independently added, when inadequate. An above-mentioned thing and the same thing can be used as a distributed stabilizer in this case.

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

index of ITO particle dispersion liquid is -20 or more under the Measuring condition in the above-mentioned dispersion medium, when it is made into a glass laminate using the glass cell of 1mm of optical path lengths, its optical path length is shorter than it, and the above-mentioned polyvinyl-acetal resin contains it to the medium. Therefore, -12 or more are suitable for the reflective yellow index of a glass laminate.

[0075]

Furthermore, in the reflective measurement by the deflection photometer, among the reflected light distribution in 45 incident angles, the reflective measured value of 0 times is 25 or less, and the above-mentioned interlayer thru/or glass laminate of this invention is 15 or less more preferably 20 or less. This means that there is little dispersion of the light by secondary condensation of an ITO particle, and there is little nebula. If reflective measured value exceeds 25, nebula will increase and the transparency of the glass laminate obtained will become practically inadequate. In addition, the reflective measured value of this deflection photometry is a value which made the reference reflective measured value of the glass laminate which laminated two clear glass on the basis of 0 times among the reflected light distribution in 45 incident angles by the interlayer by which the ITO particle is not distributed, and deducted that reference about the above-mentioned interlayer thru/or the glass laminate.

[Effect of the Invention]

[0076]

According to this invention, it excels in the dispersibility of a tin dope indium oxide particle, even when an include angle is given, it has high transparency, and it is hard to produce a solvent shock, and the tin dope indium oxide particle dispersion liquid which maintain the good distributed condition of a tin dope indium oxide particle further at the time of mixing with dispersion liquid and resin can be obtained. The tin dope indium oxide particle dispersion liquid of this invention are suitable for manufacture of the interlayer for glass laminates, and the interlayer for glass laminates excellent in heat ray electric shielding nature and its glass laminate can be obtained by using these dispersion liquid

[Best Mode of Carrying Out the Invention]

[0077]

An example is hung up over below and this invention is explained to it in more detail. In addition, this invention is not limited to these examples. Moreover, the measuring method thru/or the evaluation approach were performed by the following approaches, respectively.

[0078]

(a) Primary mean particle diameter of an ITO particle

It computed from the degree type from the measured value of specific surface area (BET). Thus, it is checked that the mean particle diameter for which it asked from specific surface area is mostly in agreement with the particle size which carried out direct observation from the transparency type electron microscope. The specific surface area by the BET adsorption method was measured using the beta SOBU automatic surface area total 4200 molds by the micro truck company.

a(micrometer) = 6/(rhoxB) [a: Mean-particle-diameter, rho>true-specific-gravity, and B:specific-surface-area (m2/g)]

[0079]

(b) The crystal-lattice constant of an ITO particle

Automatic X-ray diffractometer MOwith monochromator3X was used for the lattice constant, it amended it with the high-purity-silicon single crystal (99.9999%), computed the spacing from the peak over indices of crystal plane (hkl), and searched for it with the least square method.

[0080]

(c) Tv and Ts of ITO particle dispersion liquid

Using the ITO particle dispersion liquid for evaluation (0.7 % of the weight) put into the glass cell of 1mm of optical path lengths, with the recording spectrophotometer (Hitachi, Ltd. make U-4000), the permeability of 300-2100nm was measured and it asked for the light permeability (Tv) of 380-780nm, and the solar radiation permeability (Ts) of 300-2100nm according to

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

[0087]

Especially the method of manufacturing the above-mentioned interlayer for glass laminates of this invention is not limited, for example, in addition to the plasticizer for interlayers and/or additive which blend this the above-mentioned resin and if needed so that the concentration of a final ITO particle may become the expected range, it mixes, the ITO resin dispersant of this invention is used as a resin constituent, and the approach of producing a film in the shape of a sheet by the usual producing - film methods, such as an extrusion process, the calender method, and the pressing method, etc. is mentioned. The extrusion process by the biaxial said direction can be desirable, and can make Hayes improve further especially. Thus, the glass laminate which has the outstanding heat ray electric shielding nature can be manufactured using the produced interlayer for glass laminates. In addition, the manufacture approach of a glass laminate is conventionally good by the well-known approach.

[0088]

The above-mentioned interlayer for glass laminates of this invention is used in the condition of usually having been put between the glass which carried out the laminating. As glass, high temperature line absorption glass, clear glass, and Green glass etc. is used, for example. In addition, light permeability is 75% or more, and high temperature line absorption glass means the heat absorbing glass whose permeability is 65% or less in a 900-1300nm full wave length field.

[0089]

In the bottom of the Measuring condition to which the above-mentioned interlayer thru/or glass laminate of this invention put the interlayer of 0.78mm of thickness between clear glass with a thickness of 2.5mm The electromagnetic wave shielding ability in the frequency of 0.1MHz - 26.5GHz 10dB or less. The solar radiation permeability in the wavelength field whose Hayes is 1.0% or less and whose light permeability is 70% or more and 300-2100nm is 80% or less of light permeability. A reflective yellow index is -12 or more, and it has -eight or more heat ray electric shielding nature more preferably -ten or more.

[0070]

It becomes an index showing how much electromagnetic wave shielding ability is decreased in case the electromagnetic wave of a test frequency penetrates the above-mentioned interlayer thru/or a glass laminate. When this glass laminate is used for the windshield of an automobile etc. as this electromagnetic wave shielding ability is 10dB or less, in the car can use migration communication equipment in recent years etc. satisfactory.

[0071]

The above-mentioned interlayer of this invention thru/or Hayes of a glass laminate are 1.0% or less. If it exceeds 1.0%, the transparency of an interlayer thru/or a glass laminate will become practically inadequate.

[0072]

In the above-mentioned interlayer thru/or glass laminate of this invention, light permeability is 70% or more. The transparency of an interlayer thru/or a glass laminate cannot become being less than 70% practically inadequate, and the regulation system of the windshield for cars cannot be passed, but good visibility will be barred.

[0073]

The 300-2100nm [of wavelength fields] solar radiation permeability of the above-mentioned interlayer thru/or glass laminate of this invention is 80% or less of light permeability. If 80% of light permeability is exceeded, an interlayer thru/or the thermal insulation nature of a glass laminate will become practically inadequate.

[0074]

A reflective yellow index is -12 or more, and the above-mentioned interlayer thru/or glass laminate of this invention is -eight or more more preferably -ten or more. This means that dispersion of the light by the ITO particle is low, and there is little nebula. In addition, in the case of the same concentration and the same distribution condition, it depends for a reflective yellow index on the optical path length of an ITO particle dispersing element, a dispersion-medium object, the glass quality of the material, etc. Although the reflective yellow

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

Japanese Industrial Standards (JIS R 3106).

[0081]

(d) The reflective yellow index of ITO particle dispersion liquid

The reflection factor of 380-780nm was measured using the same dispersion liquid and same measurement cel as the above-mentioned (**), and the recording spectrophotometer, and the reflective yellow index was computed based on Japanese Industrial Standards (JIS K 7103).

(e) Hayes of ITO particle dispersion liquid

Based on Japanese Industrial Standards (JIS K 7105), Hayes was measured with the integral equation turbidity meter (Tokyo Denshoku Co., Ltd. make) using the same dispersion liquid and a measurement cel with the above-mentioned (**).

[0082]

(f) Deflection photometry of ITO particle dispersion liquid

The halogen lamp was used for the light source with the automatic deflection photometer (GP { by the Murakami color company } - 200) using the same dispersion liquid and a measurement cel with the above-mentioned (**), and the reflected light distribution in 45 incident angles was measured. The light-receiving range is -90 - 90 degrees, and it asked for it on the basis of 0 times among the reflected light distribution. The plasticizer which does not contain an ITO particle was enclosed with the glass cell of 1mm of optical path lengths, the value in 0 times was calculated, and this value was made into the reference of reflective measured value. The above-mentioned dispersion liquid were measured similarly and the value which deducted the reference from the measurement-size value was made into reflective measured value. In addition, in addition to this about the Measuring condition, it measured on the following conditions.

Light-source reinforcement: 12V, 50W Measurement class: Reflective measurement,

Electric eye: Photomultiplier tube Sample gate angle: 2.5 degrees,

Electric-eye conditions: SENSITIVITY ADJ:999 HIGH VOLT ADJ:999

(g) Particle size of the ITO particle in ITO particle dispersion liquid

Particle-size-distribution measurement of the ITO particle in liquid was performed using the Nikkiso micro truck UPA grading-analysis meter about the ITO particle dispersion liquid adjusted so that the concentration of an ITO particle might become 10% of the weight.

[0083]

(h) Tv and Ts of a glass laminate

Using the recording spectrophotometer (Hitachi, Ltd. make U-4000), the permeability of 300-2100nm of a glass laminate was measured, and it asked for the light permeability (Tv) of 380-780nm, and the solar radiation permeability (Ts) of 300-2100nm according to Japanese Industrial Standards (JIS R 3106 "the test method of the permeability, the reflection factor, the emissivity, and the rate of a solar radiation heat gain of sheet glass").

[0084]

(i) The reflective yellow index of a glass laminate

Using the recording spectrophotometer (Hitachi, Ltd. make U-4000), the reflection factor of 380-780nm was measured, and the reflective yellow index was computed based on Japanese Industrial Standards (JIS K 7103).

(j) Hayes of a glass laminate

About the glass laminate, Hayes was measured based on Japanese Industrial Standards (JIS K 7105) using the integral equation turbidity meter (Tokyo Denshoku Co., Ltd. make).

[0085]

(**) Electromagnetic wave shielding [of a glass laminate] (deltadb)

The KEC method measurement (electromagnetic wave shielding-effect measurement of the near community) indicated the min and maximum of the difference in the above-mentioned frequency for the reflection loss value (dB) of the range of 0.1-10MHz as compared with the float glass veneer of 2.5mm of the usual board thickness. Moreover, the reflection loss value (dB) of the range of 2-26.5GHz stood the sample 600mm angle among one pair of transmitting carrier trust of antennas, received the electric wave from electric-wave signal generation equipment with the spectrum analyzer, and evaluated electromagnetic wave shielding [of the

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje

2006/05/19

sample] (electromagnetic wave measuring method of a distant place community).
[0088]
(**) An interlayer and deflection photometry of a glass laminate
Using the automatic deflection photometer (GP[by the Murakami color company]- 200), the halogen lamp was used for the light source and the reflected light distribution in 45 incident angles was measured. The light-receiving range is -90 - 90 degrees, and it asked for it on the basis of 0 times among the reflected light distribution. The glass laminate which stuck by pressure the interlayer which does not contain an ITO particle with the clear glass of two sheets was measured, the value in 0 times was calculated, and this value was made into the reference of reflective measured value. The glass laminate for evaluation was measured and the value which deducted the reference from the measurement-size value was made into reflective measured value. In addition, in addition to this about the Measuring condition, it measured on the following conditions.
Light-source reinforcement: 12V, 50W Measurement class: Reflective measurement.
Electric eye: Photomultiplier tube Sample gate angle: 2.5 degrees.
Electric-eye conditions: SENSITIVITY ADJ:999 HIGH VOLT ADJ:999
[0087]
(**) The distribution condition of the ITO particle in an interlayer
The super-flake of an interlayer was produced using the microtome, using the transmission electron microscope (TEM, H[by Hitachi, Ltd.]-7100FA mold), the range of 3micrometers4micrometer was expanded to the x20000 time scale factor, and this super-flake was photoed. The obtained image was observed visually, the particle diameter of all the ITO particles all over the above-mentioned range was measured, and it asked for mean particle diameter with a volume conversion average. At this time, the particle diameter of an ITO particle took the longest path of a particle. Furthermore, the with a 1-micrometer particle diameter [particle diameter 100nm or more per two] particulate number was computed by asking for a particulate number with a particle diameter of 100nm or more which exists in the above-mentioned photographic coverage, and *(ing) by 2 the photographed area of 12 micrometers.
[0088]
(**) The adhesive property of an interlayer
The pan mel value estimated the adhesive property over the glass of an interlayer. Adhesive strength with glass is so large that a pan mel value is large, and adhesive strength is small when small. The test method is as follows. First, the glass laminate was left to the temperature of -18±0.6 degrees C for 16 hours, and was adjusted to it, it ground until the hammer whose head is 0.45kg struck this and the particle size of glass was set to 8mm or less, and it judged by sample [limit] which carried out grade attachment of whenever [film after glass carries out partial avulsion exposure-] beforehand, and the result was expressed as a pan mel value according to Table 3. As for the adhesive strength to the glass laminate of an interlayer, it is desirable to be adjusted so that a pan mel value may be set to 3-6.
[Example 1]
[0089]
[Preparation of ITO particle dispersion liquid]
ITO particle dispersion liquid were dispersedly mixing the ethanol 4 weight section and the triethylene glycol-G 2-hexanoate (3GO) 80 weight section and prepared as the polyoxyethylene-alkyl-ether phosphoric ester compound 1 weight section, the 2-ethylhexanoic acid 2 weight section, the acetylacetone 3 weight section, and an organic solvent as the ITO particle (primary mean-particle-diameter [of 20nm], crystal-lattice constant of 10.12Å) 10 weight section, and a dispersant. This presentation was shown in Table 1. These ITO particle dispersion liquid were diluted with triethylene glycol-G 2-hexanoate (3GO) so that ITO particle concentration might become 0.7% of the weight, and it considered as the ITO particle dispersion liquid for evaluation. About dispersion liquid of 0.7 % of the weight of this ITO concentration, the reflective measured value by light transmission (Tv), solar radiation transmission (Ts), Hayes, the reflective yellow index, and deflection photometry

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje 2006/05/19

JP.2005-187226.A [DETAILED DESCRIPTION] 19/24 ページ

Using the ITO particle dispersion liquid (34.5 % of the weight of ITO concentration, sample No1b) shown in Table 1, this was mixed to polyvinyl butyral resin, the magnesium of sample No1a and tales doses was added, and the ITO particle concentration of 0.7 % of the weight and 0.2% of the weight of an interlayer (0.76mm of thickness) were prepared. The glass laminate was prepared like sample No1a using this interlayer. Physical properties were measured about this glass laminate. This result was shown in Table 2 (sample No1b).
[Example 2]
[0096]
It considered as the amount used which shows each component in Table 1 using the distributed stabilizer of three components shown in Table 1, and alcohols using the thing of the primary particle size shown in Table 1 as an ITO particle, and a lattice constant, and also ITO particle dispersion liquid were manufactured like the example 1. The component of these dispersion liquid was shown in Table 1. It diluted with the plasticizer for interlayers of a publication to Table 1, and the interlayer was manufactured so that it might become the ITO concentration shown in Table 2 using these dispersion liquid, and the glass laminate was manufactured using this interlayer. It evaluated by measuring physical properties about this ITO particle dispersion liquid and glass laminate. This result was shown in Table 2 (samples No2-No9).
[Example 3]
[0097]
It considered as the amount used which shows each component in Table 1 using the compound shown in Table 1 as a plasticizer for interlayers, and also ITO particle dispersion liquid were manufactured like the example 1. The component of these dispersion liquid was shown in Table 1. It diluted with the plasticizer for interlayers of a publication to Table 1, and the interlayer was manufactured so that it might become the ITO concentration shown in Table 2 using these dispersion liquid, and the glass laminate was manufactured using this interlayer. It evaluated by measuring physical properties about this ITO particle dispersion liquid and glass laminate. This result was shown in Table 2 (samples No10-No12).
[0098]
[The example of a trial]
According to the amount of the table 1 used, ITO particle dispersion liquid were manufactured using what is shown in Table 1 about an ITO particle, the plasticizer for interlayers, a distributed stabilizer, and alcohols. It diluted with the plasticizer for interlayers of a publication to Table 1, and the interlayer was manufactured so that it might become the ITO concentration shown in Table 2 using these dispersion liquid, and the glass laminate was manufactured using this interlayer. It evaluated by measuring physical properties about this ITO particle dispersion liquid and glass laminate. This result was shown in Table 2 (samples No13-No14).
[Comparative Example(s)]
[0099]
According to the amount of the table 1 used, ITO particle dispersion liquid were manufactured using what is shown in Table 1 using the ITO particle with a little large lattice constant about the plasticizer for interlayers, a distributed stabilizer, and alcohols. Moreover, according to the amount of the table 1 used, ITO particle dispersion liquid were manufactured using what is shown in Table 1 about an ITO particle, the plasticizer for interlayers, a distributed stabilizer, and alcohols. The glass laminate was manufactured using these dispersion liquid. It evaluated by measuring physical properties about this ITO particle dispersion liquid and glass laminate. This result was shown in Table 2 (samples No15-No18).
[0100]
Not using a distributed stabilizer and alcohols, ITO particle dispersion liquid were manufactured like the example 1 only using the plasticizer for interlayers. The component of these dispersion liquid was shown in Table 1. Furthermore, the glass laminate was manufactured using these dispersion liquid. It evaluated by measuring physical properties about this ITO particle dispersion liquid and glass laminate. This result was shown in Table 2

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje 2006/05/19

was shown in Table 2. Moreover, the volume mean particle diameter of an ITO particle and 90% particle size of accumulation were shown in Table 2 about dispersion liquid of 10 % of the weight of ITO concentration (sample No1a).
[0090]
Moreover, the amount of mixing of an ITO particle was made into the 34.5 weight sections, and it considered as a polyoxyethylene-alkyl-ether phosphoric ester compound, 2-ethylhexanoic acid, an acetylacetone, ethanol, and the amount that shows 3GO in Table 1 respectively, and these were mixed, it considered as ITO particle dispersion liquid, this was further diluted with 3GO(s), and dispersion liquid of 0.7 % of the weight of ITO concentration and dispersion liquid of 10 % of the weight of ITO concentration were prepared. The above-mentioned physical properties were measured like [dispersion liquid / these] the above-mentioned sample No1a, and this result was shown in Table 2 (sample No1b).
[0091]
Furthermore, the amount of mixing of an ITO particle was made into 25 weight sections, and the polyoxyethylene-alkyl-ether phosphoric ester compound of the amount shown in Table 1, 2-ethylhexanoic acid, an acetylacetone, ethanol, and 3GO were mixed, it considered as ITO particle dispersion liquid, this was diluted with 3GO(s), and dispersion liquid of 0.7 % of the weight of ITO concentration and dispersion liquid of 10 % of the weight of ITO concentration were prepared. Physical properties were measured like [dispersion liquid / these] the above-mentioned sample No1a, and this result was shown in Table 2 (sample No1c).
[0092]
[Composition of a polyvinyl butyral]
Polyvinyl alcohol average-degree-of-polymerization 1700 and saponification degree % [% of 99.2 mols] 275g was added to 2890g of pure water, and the heating dissolution was carried out. Temperature control of this solution was carried out to 15 degrees C. 201g of hydrochloric acids of 35 % of the weight of concentration and n-butyraldehyde 157g were added, 15 degrees C was held, and the reactant was deposited. Subsequently, after holding the system of reaction at 60 degrees C for 3 hours and making a reaction complete, superfluous water washed, unreacted n-butyraldehyde was flushed, the sodium-hydroxide water solution which is a general-purpose neutralizer neutralized the hydrochloric-acid catalyst, with still more superfluous water, after 2-hour rinsing, it dried and white powder-like polyvinyl butyral resin was obtained. Whenever [average butyral-ized / of this polyvinyl butyral resin] was 68.5-mol %.
[0093]
[Manufacture of the interlayer for heat ray electric shielding glass laminates]
ITO particle dispersion liquid shown in Table 1 to the polyvinyl-butylal-resin 100 weight section (10 % of the weight of ITO concentration) Add the sample No1a2.8 weight section, and 3GO(s) are added and diluted so that this ITO particle concentration may become 0.2% of the weight. Furthermore, the mixture of 2-ethyl butanoic acid magnesium and magnesium acetate is added so that a magnesium content may be set to 60 ppm. After fully kneading this with a roll mill, press forming was carried out for 30 minutes at 150 degrees C using the press-forming machine, and the interlayer of 0.78mm of average thickness was prepared.
[0094]
[Manufacture of a glass laminate]
After having put the above-mentioned interlayer from the both ends with the transparent float glass (2.5mm in 30cmx30cmx thickness) of two sheets, putting this in in the rubber back and carrying out indirect desulfurization mind with the degree of vacuum of 2660Pa for 20 minutes, it moved to oven, deaerated, and the vacuum press was carried out, holding for 30 minutes at 90 more degrees C. Thus, sticking by pressure was performed for the glass laminate by which preparative pressure arrival was carried out for 20 minutes on condition that 135 degrees C and pressure 118 N/cm2 in the autoclave, and the glass laminate was obtained. Physical properties were measured about this glass laminate. This result was shown in Table 2 (sample No1a).
[0095]
(sample No19).
[0101]
One kind of a sulfate or n-butanoic acid was used as a distributed stabilizer, without using alcohols, and also ITO particle dispersion liquid were manufactured like the example 1. The component of these dispersion liquid was shown in Table 1. The glass laminate was manufactured using these dispersion liquid. Physical properties were measured about this ITO particle dispersion liquid and glass laminate. This result was shown in Table 2 (samples No20-No21).
[0102]
Sample No1a of Table 1 and the component excluding alcohols from the component of No2 and No12 were used, and also ITO dispersion liquid were prepared like the example 1, and the glass laminate was manufactured using these dispersion liquid. Physical properties were measured about this ITO particle dispersion liquid and glass laminate. This result was shown in Table 2 (a sample No22, No23, No24).
[0103]
ITO particle dispersion liquid were manufactured like the example 1 using a plasticizer and alcohols, without using a distributed stabilizer. The component of these dispersion liquid was shown in Table 1. Furthermore, the glass laminate was manufactured using these dispersion liquid. It evaluated by measuring physical properties about this ITO particle dispersion liquid and glass laminate. This result was shown in Table 2 (sample No25).
[0104]
With the same ITO particle and same plasticizer for interlayers as an example 1, as shown in Table 1, ITO particle dispersion liquid were manufactured like the example 1 using an anion system surfactant or higher-fatty-acid ester. The component of these dispersion liquid was shown in Table 1. Furthermore, the glass laminate was manufactured using these dispersion liquid. It evaluated by measuring physical properties about this ITO particle dispersion liquid and glass laminate. This result was shown in Table 2 (samples No26 and No27).
[0105]
As shown in Table 1 and 2, as compared with a comparison sample (No16-No21, No25-No27), the ITO particle dispersion liquid and the glass laminate of an example (No1-No12) of this invention have high light transmission (Tv), and its Hayes is low, and its absolute value of a reflective yellow index is small. Furthermore, the glass laminate of the example (No1-No12) of this invention has each of deflection photometry values, volume mean particle diameter, and sharply low numbers of 100nm superparticles as compared with a comparison: sample (No16-No21, No25-No27). Moreover, each pan mel value is 4 and is adjusted to the desirable range.
[0106]
Each of light transmission, solar radiation transmission, Hayes, reflective yellow indexes, reflective measured value of deflection luminous intensity, and pan mel values of the example No13 of a trial which does not contain the n-butanoic acid of a distributed stabilizer is good with the example No14 of a trial which does not contain the acetylacetone of a distributed stabilizer.
[0107]
On the other hand, solar radiation permeability [as opposed to light permeability in the comparison sample No15 with a little large lattice constant of an ITO particle] separates from the range of this invention. Moreover, a comparison sample (No16-No21, No25-No27) has Hayes of ITO particle dispersion liquid higher than 1.0%, a reflective yellow index is quite lower than -20, and the reflective measured value of deflection luminous intensity is 40 or more. Moreover, Hayes of the interlayer for glass laminates is higher than 1.0%, a reflective yellow index is the level of -15-18, the reflective measured value of deflection luminous intensity is the level of 29-68, and all have separated from the range of this invention.
[0108]
The comparison samples No22-No24 of Hayes of ITO particle dispersion liquid are higher than 1.0%, its reflective yellow index is lower than -20, and the reflective measured value of deflection luminous intensity is 50 or more. Moreover, although No22 and No23 are 1.0% or

http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi_ejje 2006/05/19

BEST AVAILABLE COPY

[0110]
[Table 2-1]

No.	TMOE-3				牛乳用可飼料				分枝定産乳				分枝定産乳				7/5-14			
	一次牧草	種子刈草	量	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	種類	量	種類		
1a	20	1012	10	300	80	7/20/21/5	1	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
1b	20	1012	34.5	300	31	7/20/21/5	2.4	2-21/5-4/7/20	7	7/21/5/21/5	10.5	19-4	13	19-4	13	19-4	13	19-4		
1c	20	1012	23	300	50	7/20/21/5	2.5	2-21/5-4/7/20	3	7/21/5/21/5	7.5	19-4	10	19-4	10	19-4	10	19-4		
2	25	1014	20	300	55	7/20/21/5	5	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	1	19-4	7	19-4	7	19-4	7	19-4		
3	30	1015	30	300	30	7/20/21/5	6	2-21/5-4/7/20	3	7/21/5/21/5	8	19-4	5	19-4	5	19-4	5	19-4		
4	40	1014	80	300	10	7/20/21/5	4	2-21/5-4/7/20	0.05	7/21/5/21/5	0.05	19-4	4.5	19-4	4.5	19-4	4.5	19-4		
5	30	1011	20	300	75	7/20/21/5	0.01	2-21/5-4/7/20	1	7/21/5/21/5	2	19-4	6	19-4	6	19-4	6	19-4		
6	45	1014	40	300	45	7/20/21/5	2	2-21/5-4/7/20	5	7/21/5/21/5	3	19-4	5	19-4	5	19-4	5	19-4		
7	60	1016	10	300	85	7/20/21/5	0.5	2-21/5-4/7/20	1	7/21/5/21/5	3	19-4	5	19-4	5	19-4	5	19-4		
8	40	1014	30	300	55	7/21/5-21/5-4	1	2-21/5-4/7/20	4	7/21/5/21/5	3	19-4	5	19-4	5	19-4	5	19-4		
8	50	1015	50	300	24	7/20/21/5	1	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
10	20	1012	10	400	80	7/20/21/5	1	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
11	20	1012	10	400	80	7/20/21/5	1	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
12	20	1012	10	300	78	7/20/21/5	2	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
13	20	1012	10	300	79	7/20/21/5	2	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
14	20	1012	10	300	79	7/20/21/5	2	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
15	20	1016	10	300	78	7/20/21/5	2	2-21/5-4/7/20	3	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
16	210	1016	10	300	78	7/20/21/5	2	2-21/5-4/7/20	3	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
17	20	1012	10	300	78	-	-	2-21/5-4/7/20	3	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
18	20	1012	10	300	81	-	-	-	-	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
19	20	1012	10	300	80	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
20	20	1012	10	300	83	7/20/21/5	2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
21	20	1012	10	300	87	-	-	2-21/5-4/7/20	3	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
22	20	1012	10	300	84	7/20/21/5	1	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
23	25	1014	20	300	82	7/20/21/5	5	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	1	19-4	7	19-4	7	19-4	7	19-4		
24	20	1012	10	300	84	7/20/21/5	1	2-21/5-4/7/20	2	7/21/5/21/5	3	19-4	4	19-4	4	19-4	4	19-4		
25	20	1012	10	300	84	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-		
27	20	1012	10	300	88	高産乳用飼料(2年産%)				高産乳用飼料(2年産%)				高産乳用飼料(2年産%)						
TMOE-3:3.0産乳、7/21/5/21/5:2年産乳、7/21/5/21/5:2年産乳、7/21/5/21/5:2年産乳																				
(注)一次牧草:一次刈草の干草(100%)、種子刈草の干草、二次刈草の干草、二次刈草の干草、二次刈草の干草																				

2006/05/19

[illegible]

[0111]
[Table 2-2]

0.7mm厚%炭素鋼板													10mm厚%炭素鋼板		
TPO被覆型片材仕様													TPO被覆型片材仕様		
No.	Tv	Ta	△A	反材	反材割	中材割	DOO	TTO	Tv	Ta	△A	電絶被覆 透過性	反材	反材割	中材割
%	%	%	%	%	定値	mm	mm	定値	%	%	%	%	%	定値	mm
15	919	692	0.4	-1.9	6.9	41	74	0.2	87.2	70.5	0.4	3	-1.8	1.3	48
16	801	49.8	1.5	-30.8	69.9	180	290	0.2	78.0	49.8	1.5	3	-17.2	53.8	210
17	820	54.0	2.1	-28.0	40.5	100	205	0.2	78.5	53.0	1.4	3	-17.1	39.5	105
18	818	53.7	2.1	-28.0	72.4	100	200	0.2	78.1	52.5	1.4	3	-17.0	62.9	105
19	802	50.6	3.2	-32.8	82.2	140	300	0.2	78.4	49.5	1.7	3	-18.1	65.8	125
20	890	60.5	1.2	-24.0	53.4	85	170	0.2	86.2	62.2	1.2	3	-15.6	39.5	90
21	811	52.8	2.8	-30.5	75.5	130	280	0.2	77.0	51.2	1.5	3	-17.6	59.6	120
22	912	63.8	1.2	-21.5	50.2	85	170	0.2	88.4	67.0	0.7	3	-14.5	38.0	90
23	808	60.5	1.3	-23.0	52.5	85	170	0.2	87.1	67.2	0.8	3	-15.1	39.0	90
24	823	53.5	2.5	-30.0	77.8	120	270	0.2	78.2	52.2	1.8	3	-18.5	66.2	130
25	818	53.8	2.2	-28.5	49.4	100	210	0.2	78.2	52.7	1.4	3	-17.1	50.5	110
26	843	57.8	1.2	-23.5	39.7	80	165	0.2	80.5	51.8	1.2	3	-15.4	28.5	90
27	840	57.4	1.2	-23.8	42.8	90	170	0.2	80.0	51.2	1.2	3	-15.6	31.1	90

(注) 反材Vは反材イエローエポキシ樹脂、反材割は反材イエローエポキシ樹脂による測定値、中材割は反材平均厚子値、電絶透過性は(△m)、100mm厚板に換算した値。

2006/05/19

100mm ² 粒子板	バネの値
0	4
7	4
3	3
3	3
4	3
2	8
4	3
2	4
4	4
3	3
2	8
2	8

[0112]
[Table 3]

中間調査出席率(%)	100	90	85	60	40	20	10	5	2以下
パンメル値	0	1	2	3	4	5	6	7	8

[Translation done.]

BEST AVAILABLE COPY